



Analyse mathématique et numérique de modèles pour les matériaux, de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique

Tony Lelièvre

► To cite this version:

Tony Lelièvre. Analyse mathématique et numérique de modèles pour les matériaux, de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique. Mathématiques [math]. Université Paris Dauphine - Paris IX, 2009. tel-00392808

HAL Id: tel-00392808

<https://theses.hal.science/tel-00392808>

Submitted on 9 Jun 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS IX DAUPHINE

HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

SPÉCIALITÉ : MATHÉMATIQUES APPLIQUÉES
ET APPLICATIONS DES MATHÉMATIQUES (CNU 26)

Tony LELIÈVRE

Sujet : *Analyse mathématique et numérique de modèles
pour les matériaux, de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique*

soutenue le mercredi 3 juin 2009 devant le jury composé de

Président :	Paul MALLIAVIN
Rapporteurs :	Laurent DESVILLETES Olivier PIRONNEAU Denis TALAY
Examineurs :	Benjamin JOURDAIN Claude LE BRIS
Coordinateur :	Pierre-Louis LIONS

Remerciements

Mes remerciements vont tout d'abord à Jean-Frédéric Gerbeau, Benjamin Jourdain et Claude Le Bris qui ont accompagné mes premiers pas de chercheur. Ils m'ont beaucoup appris, et je suis très heureux de continuer à travailler avec eux.

Je suis également extrêmement reconnaissant à Paul Malliavin et à Pierre-Louis Lions qui m'ont fait l'honneur de présider le jury et de tenir le rôle de coordinateur de cette habilitation.

Je tiens également à remercier Laurent Desvillettes, Olivier Pironneau et Denis Talay qui ont accepté d'écrire un rapport sur mon habilitation. Je leur suis très reconnaissant de l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux, et de leur soutien chaleureux.

Je suis très reconnaissant à tous ceux qui m'ont soutenu pour obtenir un poste à l'Ecole des Ponts. Le CERMICS est un laboratoire exceptionnel par la qualité de ses membres et des étudiants qui y travaillent, et par l'excellente ambiance qui y règne. Une pensée particulière pour les secrétaires Catherine Baccaert et Martine Ouhanha qui nous facilitent la tâche au quotidien.

Le travail de recherche serait bien aride sans discussions et collaborations avec d'autres chercheurs. Un grand merci à mes coauteurs, et aux étudiants qui ont travaillé avec moi : Sébastien Boyaval, Eric Cancès, Alexandre Ern, Erwan Faou, Jean-Frédéric Gerbeau, Benjamin Jourdain, Claude Le Bris, Frédéric Legoll, Claude Mangoubi, Yvon Maday, Kimiya Mioukadeh, Antonin Orriols, Félix Otto, Mathias Rousset, Raphaël Roux, Gabriel Stoltz et Eric Vanden Eijnden.

J'aimerais également remercier les ingénieurs, physiciens, biologistes et chimistes qui acceptent de passer du temps à m'expliquer leurs problèmes de praticiens, et à écouter mes points de vue de mathématicien : Roland Assaraf, Michel Caffarel, Chris Chipot, Giovanni Ciccotti, Brad Dickson, Paul Fleurat-Lessard, Jérôme Hénin, Anthony Scémama et Thierry Tomasino.

Je termine par un grand merci à tous mes proches, et particulièrement à Marion et Jeanne sur qui je peux toujours compter pour me soutenir.

Table des matières

Introduction	3
Liste des publications	7
Activités d'encadrement	10
1 Modèles micro-macro pour les fluides viscoélastiques	11
1.1 Observations expérimentales et modélisation	11
1.2 Quelques résultats d'existence et de convergence des méthodes numériques .	15
1.2.1 Existence et unicité de solutions	15
1.2.2 Discrétisation	16
1.2.3 Modèles micro-macro ou modèles macro-macro ?	18
1.2.4 Au sujet d'une méthode de discrétisation non-linéaire des équations aux dérivées partielles en grande dimension	19
1.3 Comportement en temps long	20
1.3.1 Une "mauvaise" estimée d'énergie	21
1.3.2 Estimées d'entropie : le cas de l'équation de Fokker-Planck découplée	21
1.3.3 Estimées d'entropie : le cas couplé avec $u = 0$ sur $\partial\mathcal{D}$	23
1.3.4 Estimées d'entropie : le cas couplé avec $u \neq 0$ sur $\partial\mathcal{D}$	24
1.4 Energie libre pour les modèles macroscopiques	26
1.4.1 Estimées d'énergie libre	26
1.4.2 Schémas numériques dissipatifs pour l'énergie libre	28
2 Simulation moléculaire	31
2.1 Méthodes Quantum Monte Carlo	31
2.1.1 Variational Monte Carlo	31
2.1.2 Diffusion Monte Carlo : la <i>fixed node approximation</i>	32
2.1.3 Diffusion Monte Carlo : discrétisation	34
2.2 Dynamique moléculaire et calcul d'énergie libre	36
2.2.1 Intégration thermodynamique	39
2.2.2 Méthodes hors équilibre	42
2.2.3 Méthodes adaptatives : algorithmes	43
2.2.4 Méthodes adaptatives : étude théorique	46
2.2.5 Méthodes adaptatives : discrétisation	49
3 Ecoulements à surface libre et magnétohydrodynamique	53
3.1 Problématique industrielle et modélisation	53
3.1.1 La cuve d'électrolyse de l'aluminium	53
3.1.2 Modélisation magnétohydrodynamique	54
3.2 Discrétisation par la méthode <i>Arbitrary Lagrangian Eulerian</i>	56
3.2.1 Formulation faible	57
3.2.2 Discrétisation de la formulation faible	59
3.2.3 Quelques propriétés	61
3.3 Un cas test important pour les applications : le <i>rolling</i>	62
3.4 Le problème de la ligne de contact	63
3.4.1 La condition aux limites de Navier généralisée (GNBC)	64
3.4.2 Simulations numériques avec la GNBC	66
3.4.3 Estimées d'énergie et stabilité des schémas	67

Conclusion et travaux en cours	73
Références	75

Introduction

La première partie de ce mémoire concerne l'étude de modèles multi-échelles (ou micro-macro) pour les fluides complexes. Il s'agit essentiellement d'une version condensée de l'article de revue [TL35]. L'intérêt de ces modèles est d'éviter d'avoir à postuler des lois de comportements phénoménologiques, en couplant une description macroscopique classique (lois de conservations de la quantité de mouvement et de la masse) sur la vitesse et la pression, à des modèles microscopiques pour l'évolution des microstructures dans le fluide, à l'origine du caractère non-newtonien du fluide. La loi de comportement consiste alors à exprimer le tenseur des contraintes en fonction de la conformation des microstructures. Après avoir introduit les modèles dans la section 1.1, nous rappelons dans la section 1.2 quelques résultats d'existence et de convergence des méthodes numériques obtenus principalement durant la thèse [TL01, TL04, TL05, TL06, TL25, TL28, TL33]. Nous proposons également une méthode numérique pour coupler des modèles micro-macro (fins mais chers) avec des modèles macroscopiques (plus grossiers, mais beaucoup plus économiques en temps de calcul) [TL16]. Nous analysons par ailleurs une méthode de résolution des équations aux dérivées partielles en grande dimension qui a été proposée dans le contexte de la résolution numérique des modèles à l'échelle microscopique pour les fluides polymériques [TL38].

L'essentiel de nos travaux les plus récents sur le sujet concerne le comportement en temps long de ces modèles, avec un double objectif : théoriquement, la compréhension des modèles physiques passe souvent par l'étude de la stabilité des solutions stationnaires, et de la vitesse de convergence vers l'équilibre ; numériquement, la stabilité des schémas en temps long est cruciale, car on utilise typiquement des simulations instationnaires en temps long pour calculer des solutions stationnaires. Dans la section 1.3, nous montrons comment analyser le comportement des modèles micro-macro en temps long, en utilisant des méthodes d'entropie [TL09, TL11]. Cette étude a ensuite permis de comprendre le comportement en temps long de modèles macroscopiques standard (type Oldroyd-B, cf. [TL17]), et de préciser sous quelles conditions les schémas numériques vérifient des propriétés similaires de stabilité en temps long [TL36]. Ceci est l'objet de la section 1.4.

Mes co-auteurs sur ce thème sont : S. Boyaval, A. Ern, D. Hu, B. Jourdain, C. Le Bris, Y. Maday, C. Mangoubi et F. Otto.

La seconde partie du mémoire résume des travaux en simulation moléculaire, à l'échelle quantique (section 2.1), ou à l'échelle de la dynamique moléculaire classique (section 2.2). Dans la section 2.1, nous nous intéressons aux méthodes *Quantum Monte Carlo*. Il s'agit de méthodes numériques probabilistes pour calculer l'état fondamental d'une molécule (plus petite valeur propre de l'opérateur de Schrödinger à N corps). Essentiellement, il s'agit de donner une interprétation probabiliste du problème par des formules de Feynman-Kac, afin de pouvoir appliquer des méthodes de Monte Carlo (bien adaptées pour des problèmes de ce type, en grande dimension). Nous proposons tout d'abord une étude théorique de la méthode *Diffusion Monte Carlo* [TL10], et notamment d'un biais introduit par l'interprétation probabiliste (appelé *fixed node approximation*). Nous analysons ensuite les méthodes numériques utilisées en *Diffusion Monte Carlo* [TL14], et proposons une nouvelle stratégie [TL13] pour améliorer l'échantillonnage des méthodes *Variational Monte Carlo*. Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec R. Assaraf, M. Caffarel, E. Cancès, M. El Makrini, B. Jourdain, A. Scemama et G. Stoltz.

La section 2.2 porte sur l'étude des méthodes numériques pour le calcul de différences d'énergie libre en dynamique moléculaire [TL32]. En dynamique moléculaire, les modèles consistent à décrire l'état d'un système par la position (et éventuellement la vitesse) de particules (typiquement les positions des noyaux dans un système moléculaire), qui interagissent au travers d'un potentiel (qui idéalement proviendrait d'un calcul de mécanique

quantique pour déterminer l'état fondamental des électrons pour une position donnée des noyaux). L'objectif est de calculer des moyennes par rapport à la mesure de Boltzmann-Gibbs associée à ce potentiel (moyennes dans l'ensemble canonique). Mathématiquement, il s'agit d'un problème d'échantillonnage de mesures métastables (ou multi-modales), en très grande dimension. La particularité de la dynamique moléculaire est que, bien souvent, on a quelques informations sur les "directions de métastabilité" au travers de coordonnées de réaction. En utilisant cette donnée, de nombreuses méthodes ont été proposées pour permettre l'échantillonnage de la mesure de Boltzmann-Gibbs. Dans une série de travaux [TL12, TL18, TL19, TL22], nous avons analysé les méthodes basées sur des équations différentielles stochastiques avec contraintes (dont les solutions vivent sur des sous-variétés définies comme des lignes de niveaux de la coordonnée de réaction). Il s'agit en fait d'analyser des méthodes d'échantillonnage de mesures définies sur des sous-variétés de grande dimension. Plus récemment, nous avons étudié dans [TL15, TL20, TL23, TL37] des méthodes adaptatives qui ont été proposées pour se débarrasser des métastabilités. Mathématiquement, il s'agit de méthodes d'échantillonnage préférentiel, avec une fonction d'importance qui est calculée au cours de la simulation de manière adaptative. Nous avons étudié la vitesse de convergence vers la mesure d'équilibre pour ces méthodes adaptatives, en utilisant des méthodes d'entropie. Nous avons proposé de nouvelles méthodes numériques à la communauté appliquée pour utiliser au mieux ces idées, qui ont été adoptées par des praticiens du domaine [9]. En collaboration avec C. Chipot (biologiste, CNRS Nancy), nous poursuivons l'application de ces idées sur des cas-test pertinents. Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec G. Ciccotti, E. Faou, B. Jourdain, C. Le Bris, F. Legoll, M. Rousset, R. Roux, G. Stoltz et E. Vanden-Eijnden.

La troisième partie du mémoire résume des travaux issus d'une collaboration avec l'entreprise Rio Tinto (anciennement Pechiney puis Alcan), leader mondial pour la technologie des cuves d'électrolyse de l'aluminium. Cette collaboration a été entamée il y a plusieurs années par C. Le Bris, et notamment au travers de la thèse de J-F. Gerbeau. Mathématiquement, il s'agit d'analyser et de discrétiser les équations de la magnétohydrodynamique pour deux fluides incompressibles non miscibles, séparés par une interface libre. Dans la section 3.1 sont expliqués le contexte industriel et la modélisation. La section 3.2 résume la méthode numérique adoptée (méthode *Arbitrary Lagrangian Eulerian*) et donne quelques propriétés satisfaites par le schéma (stabilité, conservation de la masse). Nous montrons dans la section 3.3 comment ce modèle permet d'étudier un phénomène (potentiellement déstabilisant) observé dans les cuves d'électrolyse : le *rolling*. Ces résultats ont été pour la plupart obtenus durant la thèse [TL02, TL03, TL24, TL26, TL27, TL29]. Nous avons rédigé un livre [TL39] regroupant l'ensemble de ces contributions, et comparant notre approche avec d'autres études (cf. également [TL30]).

Plus récemment, dans le prolongement de l'étude industrielle, nous nous sommes intéressés à un problème de modélisation fondamentale pour les écoulements à surface (ou interface) libre : le mouvement de la ligne de contact (*i.e.* le bord de la surface libre qui glisse le long de la paroi). Dans la section 3.4, nous résumons ces travaux [TL21, TL31] consistant essentiellement en deux contributions : (i) une compréhension variationnelle d'une condition aux limites permettant de modéliser correctement le mouvement de la ligne de contact (*Generalized Navier Boundary Condition*, cf. [82]) et son implémentation dans un schéma *Arbitrary Lagrangian Eulerian*, (ii) une analyse de la stabilité du schéma obtenu.

Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec J-F. Gerbeau, C. Le Bris, M. Le Hervet, N. Ligonesche, O. Martin, A. Orriols et T. Tomasino.

Je termine cette introduction en signalant des travaux qui ne sont pas résumés dans

ce mémoire, car portant sur d'autres thématiques : [TL07, TL34] (travaux en finance), et [TL08]. Par ailleurs, une collaboration sur le thème de la simulation à l'échelle mésoscopique des élastomères avec Michelin n'est pas mentionnée, car les résultats sont confidentiels.

Listes des publications

Articles publiés dans des revues internationales à comité de lecture

TRAVAUX EFFECTUÉS DURANT MA THÈSE

- [TL01] *Numerical analysis of micro-macro simulations of polymeric fluid flows : a simple case*, Mathematical Models and Methods in Applied Sciences, 12(9), p. 1205-1243, 2002. (avec B. Jourdain et C. Le Bris).
- [TL02] *Simulations of MHD flows with moving interfaces*, Journal of Computational Physics, 184, p. 163-191, 2003 (avec J-F. Gerbeau et C. Le Bris).
- [TL03] *Modelling and simulation of the industrial production of aluminium : the nonlinear approach*, Computers and Fluids, 33, p. 801-814, 2004. (avec J-F. Gerbeau et C. Le Bris).
- [TL04] *Optimal error estimate for the CONNFFESSIT approach in a simple case*, Computers and Fluids, 33, p. 815-820, 2004.
- [TL05] *Existence of solution for a micro-macro model of polymeric fluid : the FENE model*, Journal of Functional Analysis, 209, p. 162-193, 2004. (avec B. Jourdain et C. Le Bris).
- [TL06] *On a variance reduction technique for the micro-macro simulations of polymeric fluids*, Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 122, p. 91-106, 2004. (avec B. Jourdain et C. Le Bris).
- [TL07] *Efficient pricing of Asian options by the PDE approach*, Journal of Computational Finance, 8(2), p. 55-64, 2005. (avec F. Dubois).
- [TL08] *Analysis and simulation of a coupled hyperbolic/parabolic model problem*, Journal of Numerical Mathematics, 13(2), p. 81-156, 2005. (avec J.P. Croisille, A. Ern et J.Proft).

TRAVAUX POSTÉRIEURS À MA THÈSE

- [TL09] *An elementary argument regarding the long-time behaviour of the solution to a stochastic differential equation*, Annals of Craiova University, Mathematics and Computer Science series, 32, p. 39-47, 2005. (avec B. Jourdain et C. Le Bris).
- [TL10] *Quantum Monte Carlo simulations of fermions. A mathematical analysis of the fixed-node approximation*, Mathematical Models and Methods in Applied Sciences, 16(9), 1403-1440, 2006. (avec B. Jourdain et E. Cancès).
- [TL11] *Long-time asymptotics of a multiscale model for polymeric fluid flows*, Archive for Rational Mechanics and Analysis, 181(1), 97-148, 2006. (avec B. Jourdain, C. Le Bris et F. Otto).
- [TL12] *Computation of free energy differences through nonequilibrium stochastic dynamics : the reaction coordinate case*, Journal of Computational Physics, 222(2), 624-643, 2007. (avec M. Rousset et G. Stoltz).

- [TL13] *An efficient sampling algorithm for Variational Monte Carlo*, Journal of Chemical Physics, 125, 114105, 2006. (avec M. Caffarel, E. Cancès, A. Scemama et G. Stoltz).
- [TL14] *Diffusion Monte Carlo method : numerical analysis in a simple case*, Mathematical Modelling and Numerical Analysis, 41(2), 189-213, 2007. (avec M. El Makrini et B. Jourdain).
- [TL15] *Computation of free energy profiles with parallel adaptive dynamics*, Journal of Chemical Physics, 126, 134111, 2007. (avec M. Rousset et G. Stoltz).
- [TL16] *Adaptive models for polymeric fluid flow simulation*. C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. I, 344(7), 473-476, 2007. (avec A. Ern).
- [TL17] *New entropy estimates for the Oldroyd-B model, and related models*, Communications in Mathematical Sciences 5(4), 909-916, 2007. (avec D. Hu).
- [TL18] *Projection of diffusions on submanifolds : Application to mean force computation*, Communications on Pure and Applied Mathematics, 61(3), 371-408, 2008. (avec G. Ciccotti et E. Vanden-Eijnden).
- [TL19] *Analysis of some discretization schemes for constrained Stochastic Differential Equations*, C. R. Acad. Sci. Paris, Ser. I, 346(7-8), p. 471-476, 2008. (avec C. Le Bris et E. Vanden-Eijnden).
- [TL20] *Long-time convergence of the Adaptive Biasing Force method*, Nonlinearity, 21, p. 1155-1181, 2008. (avec M. Rousset et G. Stoltz).
- [TL21] *Generalized Navier Boundary Condition and Geometric Conservation Law for surface tension*, arxiv.org/abs/0804.1563, 2008, à paraître dans Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering (avec J-F. Gerbeau).
- [TL22] *Conservative stochastic differential equations : Mathematical and numerical analysis*, Rapport CERMICS 2008-376, 2008, à paraître dans Mathematics of Computation (avec E. Faou).
- [TL23] *A general two-scale criteria for logarithmic Sobolev inequalities*, Rapport CERMICS 2008-382, 2008, à paraître dans Journal of Functional Analysis.

Actes de conférences avec comité de lecture

TRAVAUX EFFECTUÉS DURANT MA THÈSE

- [TL24] *Metal pad roll instabilities*, proceeding of the 2002 TMS Annual Meeting and Exhibition, Light Metals, p. 483-487, 2002. (avec J-F. Gerbeau, C. Le Bris et N. Ligonesche).
- [TL25] *Mathematical analysis of a stochastic differential equation arising in the micro-macro modelling of polymeric fluids*, Probabilistic Methods in Fluids Proceedings of the Swansea 2002 Workshop, Eds : I M Davies, N Jacob, A Truman, O Hassan, K Morgan and N P Weatherill, p. 205-223. (avec B. Jourdain).
- [TL26] *Numerical simulations of two-fluids MHD flows*, Fundamental and Applied MHD. Proceedings of the Fifth international PAMIR Conference, p. I.101-I.105, 2002. (avec J-F. Gerbeau et C. Le Bris).

- [TL27] *Modeling and simulation of MHD phenomena in aluminium reduction cells*, Proceedings of the fourth International Conference on Electromagnetic Processing of Materials, EPM 2003, C3-10.4, p. 57-62, 2003. (avec J-F. Gerbeau et C. Le Bris).
- [TL28] *Coupling PDEs and SDEs : the illustrative example of the multiscale simulation of viscoelastic flows*, in Multiscale Methods in Science and Engineering, B. Engquist, P. Lötstedt, O. Runborg, eds., Lecture Notes in Computational Science and Engineering 44, Springer, p. 151-170, 2005. (avec B. Jourdain et C. Le Bris).
- [TL29] *Stability analysis of simplified electrolysis cells with Mistral*, proceeding of the 2006 TMS Annual Meeting and Exhibition, Light Metals, 2006. (avec T. Tomasino, M. Le Hermet et O. Martin).

TRAVAUX POSTÉRIEURS À MA THÈSE

- [TL30] *Linear versus nonlinear approaches for the stability analysis of aluminium production cells*, Proceedings of the 2006 ECCOMAS conference. (avec J-F. Gerbeau, C. Le Bris, A. Orriols et T. Tomasino).
- [TL31] *Variational formulation of the Generalized Navier Boundary Condition*, SCPDE05 conference proceeding, Eds : W Liu, M Ng and Z-C Shi, Science Press, Beijing, 2007. (avec J-F. Gerbeau).
- [TL32] *Some remarks on sampling methods in molecular dynamics*, ESAIM Proceedings, 22, p. 217-233, 2008. (avec F. Legoll et G. Stoltz).

Rapports de recherche, prépublication, articles soumis

- [TL33] *Convergence of a stochastic particle approximation of the stress tensor for the FENE-P model*, Rapport CERMICS 2004-263, 2004. (avec B. Jourdain).
- [TL34] *Partial differential equations in finance*, Rapport CERMICS 2007-363, 2007. (avec Y. Achdou et O. Bokanowski).
- [TL35] *Multiscale modelling of complex fluids : A mathematical initiation*, hal.inria.fr/inria-00165171, 2008. (avec C. Le Bris).
- [TL36] *Free energy dissipative schemes for the Oldroyd-B model*, hal.inria.fr/inria-00204620/fr/, 2008. (avec S. Boyaval et C. Mangoubi).
- [TL37] *Existence, uniqueness and convergence of a particle approximation for the Adaptive Biasing Force process*, 2008. (avec B. Jourdain et R. Roux)
- [TL38] *Results and questions on a nonlinear approximation approach for solving high-dimensional partial differential equations*, arxiv.org/abs/0811.0474, 2008. (avec C. Le Bris et Y. Maday).

Livre

- [TL39] *Mathematical methods for the Magnetohydrodynamics of liquid metals*, Numerical Mathematics and Scientific Computation, Oxford University Press, 2006. (avec J-F. Gerbeau et C. Le Bris, environ 300 pages).

Travaux en préparation

- [TL40] *A variance reduction method for parametrized solutions of SDEs using the reduced basis paradigm*, article en préparation. (avec S. Boyaval)
- [TL41] *Effective dynamics for the reaction coordinate*, article en préparation. (avec F. Legoll).
- [TL42] *Hysteresis in network models for rubber*, article en préparation. (avec F. Legoll).
- [TL43] *Free energy calculations : a mathematical perspective*, livre en préparation. (avec M. Rousset et G. Stoltz).
- [TL44] *Application of an adaptive importance sampling method for Bayesian statistics*, article en préparation. (avec N. Chopin et G. Stoltz).

Activités d'encadrement

Mon activité au sein du CERMICS m'a fourni l'opportunité de participer à l'encadrement de plusieurs doctorants :

- Antonin Orriols, thèse ayant pour titre *Algorithmes d'optimisation et de contrôle d'interface libre. Application à la production industrielle d'aluminium* (soutenue le 15 décembre 2006, directeur de thèse : C. Le Bris) ;
- Gabriel Stoltz, thèse ayant pour titre *Quelques méthodes mathématiques pour la simulation moléculaire et multiéchelle* (soutenue le 14 juin 2007, directeur de thèse : E. Cancès) ;
- Sébastien Boyaval, thèse ayant pour titre *Modélisation et simulation des fluides complexes pour le génie civil* (depuis septembre 2006, directeur de thèse : C. Le Bris) ;
- Raphaël Roux, thèse ayant pour titre *Etude probabiliste de systèmes de particules en interaction : applications à la dynamique moléculaire* (depuis septembre 2007, directeur de thèse : B. Jourdain) ;
- Kimiya Minoukadeh, thèse ayant pour titre *Méthodes numériques en dynamique moléculaire* (depuis novembre 2007, directeur de thèse : E. Cancès).

1 Modèles micro-macro pour les fluides viscoélastiques

1.1 Observations expérimentales et modélisation

De nombreux fluides ont un comportement en écoulement très éloigné de celui de l'eau et de l'air, notamment dû à des effets de mémoire. On parle de fluides complexes (par opposition aux fluides newtoniens). On peut par exemple citer le sang, les boues, les bétons, les peintures, etc... Dans de nombreux cas, ce comportement particulier est dû à des microstructures dans le fluide dont l'évolution est fortement couplée à la dynamique du solvant. Nous avons travaillé sur des modèles pour les solutions diluées de polymère, qui sont un exemple typique de tels fluides. Une solution diluée de polymère est constituée d'un solvant dans lequel on a introduit des polymères en quantité suffisamment faible pour qu'on puisse négliger les interactions stériques entre chaînes. Une molécule de polymère est une longue chaîne carbonée constituée de la répétition d'un ensemble moléculaire élémentaire appelé monomère (on peut penser typiquement à un alcane $(CH_2)^n$). On observe que la rhéologie du fluide est très fortement influencée par la présence des chaînes de polymères, même en concentration très faible.

La modélisation de ces fluides se fait typiquement par deux approches différentes et complémentaires : l'approche dite macro-macro, et l'approche dite micro-macro. Dans l'approche macro-macro, on couple un modèle macroscopique de la mécanique des milieux continus (équations de conservations de la masse, du moment, etc...) à un modèle phénoménologique (penser typiquement à des équations aux dérivées partielles) sur le tenseur des contraintes dans le fluide. Dans l'approche micro-macro, les lois de conservation macroscopiques sont couplées à des modèles décrivant directement l'évolution des microstructures dans le fluide, et le tenseur des contraintes en un point (macroscopique) est obtenu comme une fonction de la conformation des microstructures en ce point.

Illustrons cela sur le cas des fluides polymériques. Pour une présentation plus détaillée, on renvoie aux monographies [78, 16, 17, 39] ou à l'article de revue [TL35]. Une démarche similaire (cf. Section 7 dans [TL35]) permet d'obtenir des modèles micro-macro pour le sang [80], les suspensions concentrées [49], les polymères fondus [34, 39] ou les cristaux liquides [39].

Pour les deux approches (micro-macro et macro-macro), le point de départ est les équations de conservation du moment et de la masse qui s'écrivent :

$$\rho(\partial_t u + u \cdot \nabla u) = -\nabla p + \operatorname{div} \tau_{\text{tot}}, \quad (1)$$

$$\operatorname{div} u = 0, \quad (2)$$

où u est la vitesse du fluide, p la pression et τ_{tot} le tenseur des contraintes "total" (incluant la contribution visqueuse newtonienne, et la contribution non-newtonienne). Le paramètre ρ désigne la densité du fluide. On ne précise pas dans l'immédiat les conditions aux limites et les conditions initiales. Pour un fluide newtonien, le système est fermé par une relation linéaire reliant le tenseur des contraintes au taux de déformation :

$$\tau_{\text{tot}} = \eta(\nabla u + \nabla u^T) \quad (3)$$

où η est la viscosité. Pour un fluide complexe, la loi de comportement s'écrit

$$\tau_{\text{tot}} = \eta(\nabla u + \nabla u^T) + \tau \quad (4)$$

où τ est un tenseur introduit pour modéliser les contraintes dues au caractère non-newtonien du fluide. Dans l'approche macro-macro, on écrit directement une équation sur τ satisfaisant les principes fondamentaux d'invariance par changement de référentiel. Un exemple

typique est le modèle d'Oldroyd-B :

$$\lambda (\partial_t \tau + u \cdot \nabla \tau - \nabla u \tau - \tau \nabla u^T) + \tau = \eta_p (\nabla u + \nabla u^T), \quad (5)$$

où λ et η_p sont deux paramètres auxquels on pourra donner une signification par l'approche micro-macro ci-dessous. Le modèle macro-macro pour un fluide de type Oldroyd-B est donc constitué du système de quatre équations (1)-(2)-(4)-(5).

L'approche micro-macro consiste à modéliser l'évolution des microstructures (ici, des polymères) en introduisant des variables supplémentaires (variables micro) décrivant leur conformation et une dynamique sur ces variables, puis à exprimer τ en fonction de ces variables micro. Bien sûr, une description trop fine de la chaîne de polymère n'est pas adéquate, pour plusieurs raisons, à commencer par le coût en temps calcul et en mémoire. De plus, pour décrire correctement la rhéologie du fluide (échelle macroscopique) on peut espérer qu'une description assez simple du polymère soit suffisante, en retenant simplement les caractères essentielles de la microstructure (déformabilité, orientation de la chaîne, stockage de l'énergie de déformation, etc...). Enfin, une description trop fine conduirait à une échelle de temps typique pour la microstructure trop petite par rapport à l'échelle de temps macroscopique d'intérêt, ce qui rendrait le couplage difficile. On est donc amené à introduire un modèle *coarse-grainé* de la chaîne de polymère. Typiquement, on modélise la chaîne de polymère simplement par un vecteur X_t qui représente l'orientation et l'allongement de la chaîne (dans le langage de la dynamique moléculaire, cf. Section 2.2, ce vecteur est la variable collective). Le vecteur X_t est parfois appelé vecteur bout-à-bout (en pensant au vecteur qui relie une extrémité de la chaîne l'autre) mais il représente en fait plutôt le vecteur reliant deux billes, chacune de ces billes correspondant à un ensemble de monomères aux extrémités de la chaîne. Ce modèle s'appelle le modèle du *dumbbell* (haltère en français), cf. Figure 1. Des modèles plus fins (et utiles pour obtenir un comportement rhéologique plus proche de la réalité) consistent à introduire une chaîne de billes, et un ensemble de vecteurs (X_t^1, \dots, X_t^N) .

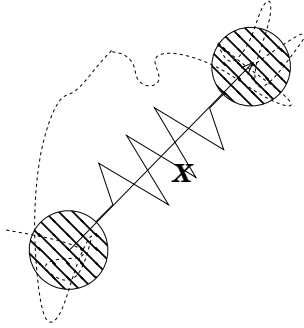


FIG. 1 – Le modèle du *dumbbell*. La chaîne de polymère (en pointillés) est modélisée par un vecteur X joignant deux billes reliées par un ressort.

Mathématiquement, X_t est un processus stochastique, qui dépend de la position (macroscopique) de la chaîne de polymère. Pour écrire une dynamique sur le vecteur X_t le principe de la modélisation est d'écrire une équation de Langevin (*zero-mass Langevin*) sur chacune des billes, puis à soustraire ces deux équations pour obtenir la dynamique du vecteur X_t . Plus précisément, si on note X_t^1 et X_t^2 la position des deux billes, on a

$$\begin{cases} \zeta (dX_t^1 - u(t, X_t^1) dt) = F(X_t) dt + \sqrt{2kT\zeta} dW_t^1, \\ \zeta (dX_t^2 - u(t, X_t^2) dt) = -F(X_t) dt + \sqrt{2kT\zeta} dW_t^2, \end{cases}$$

et on obtient les équations différentielles stochastiques suivantes sur le vecteur $X_t = X_t^2 - X_t^1$ et la position du centre de masse $R_t = \frac{1}{2}(X_t^1 + X_t^2)$:

$$\begin{cases} dX_t = (u(t, X_t^2) - u(t, X_t^1)) dt - 2\zeta^{-1}F(X_t) dt + 2\sqrt{kT\zeta^{-1}}dW_t, \\ dR_t = \frac{1}{2}(u(t, X_t^1) + u(t, X_t^2)) dt + \sqrt{kT\zeta^{-1}}dB_t, \end{cases}$$

où (W_t^1, W_t^2) et $(W_t, B_t) = \left(\frac{1}{\sqrt{2}}(W_t^2 - W_t^1), \frac{1}{\sqrt{2}}(W_t^2 + W_t^1)\right)$ sont deux couples de mouvements browniens indépendants, ζ est un coefficient de friction (la friction des billes dans le solvant), k est la constante de Boltzmann et T la température. La force $F(X_t)$ est la force qu'exerce la bille 2 sur la bille 1, que l'on discutera ci-dessous. On suppose alors qu'à l'échelle du polymère, le champ de vitesse est homogène : $u(t, X_t^i) \simeq u(t, R_t) + \nabla u(t, R_t)(X_t^i - R_t)$, et que la vitesse du solvant est plus grande que l'agitation thermique : $\sqrt{kT\zeta^{-1}} \ll u(t, R_t)$. On obtient alors la dynamique suivante :

$$\begin{cases} dX_t = \nabla u(t, R_t)X_t dt - 2\zeta^{-1}F(X_t) dt + 2\sqrt{kT\zeta^{-1}}dW_t, \\ dR_t = u(t, R_t) dt, \end{cases}$$

que l'on réécrit sous forme eulérienne (en gardant la même notation X_t pour le vecteur qui est maintenant implicitement indexé par la position de la chaîne de polymère dans le fluide) :

$$dX_t + u \cdot \nabla X_t = \left(\nabla u X_t - \frac{2}{\zeta} F(X_t) \right) dt + \sqrt{\frac{4kT}{\zeta}} dW_t. \quad (6)$$

Revenons sur la fonction F qui représente la force qui s'exerce dans le polymère. Cette force F dérive d'un potentiel Π

$$F = \nabla \Pi \quad (7)$$

et Π est tel que, quand la vitesse du solvant est nulle ($u = 0$ dans (6)) la mesure échantillonnée par X_t est celle que l'on désire observée. Cette mesure est la mesure de Boltzmann-Gibbs associée à Π : $Z^{-1} \exp\left(-\frac{\Pi(X)}{kT}\right) dX$ avec $Z = \int \exp\left(-\frac{\Pi(X)}{kT}\right) dX$. Dans le langage de la dynamique moléculaire, cf. Section 2.2, le potentiel Π est l'énergie libre associée à la variable collective X "vecteur bout-à-bout". Le potentiel Π est donc construit pour être consistant thermodynamiquement avec une mesure d'équilibre obtenue par ailleurs, typiquement par un modèle plus fin décrivant l'ensemble des atomes de carbone de la chaîne (dans l'esprit des modèles décrits dans la Section 2.2). Deux forces sont couramment utilisées : la force linéaire (modèle hookéen) qui correspond à prendre

$$F(X) = HX$$

auquel cas la mesure d'équilibre associée est gaussienne, et une force qui tend vers l'infini quand la norme de X tend vers une valeur limite (modèle FENE pour *Finitely Extensible Nonlinear Elastic*)

$$F(X) = \frac{HX}{1 - |X|^2/(bkT/H)},$$

où b est un paramètre sans dimension relié à la longueur du polymère. La force FENE est considérée comme meilleure car elle tient compte d'un caractère important du polymère, à savoir son extensibilité finie.

Pour clore le modèle micro-macro, il reste à exprimer le tenseur des contraintes τ en un point en fonction de la conformation des chaînes de polymères en ce point : c'est la

formule de Kramers, qui peut être obtenue soit par un raisonnement de type principe des puissances virtuelles (théorème du viriel), soit en revenant à la définition du tenseur des contraintes en terme de force qui s'exerce sur un plan qui traverse le fluide (cf. [39, Sections 3.7.4 et 3.7.5]). La formule de Kramers est :

$$\tau(t, x) = n_p (-kT \text{Id} + \mathbb{E}(X_t(x) \otimes F(X_t(x)))) , \quad (8)$$

où n_p est la concentration de polymère, \mathbb{E} désigne l'espérance (la moyenne) et \otimes le produit tensoriel (pour deux vecteurs colonnes X et Y , $X \otimes Y$ est la matrice XY^T). La dérivation de cette formule est basée sur l'hypothèse que la concentration de polymère est homogène. Le modèle micro-macro complet consiste en le système d'équations (1)-(2)-(4)-(6)-(8).

Il est facile de vérifier par un calcul d'Itô que le modèle Oldroyd-B est en fait exactement le modèle micro-macro avec une force hookéenne, pour les valeurs suivantes des paramètres : $\lambda = \frac{\zeta}{4H}$ (un temps caractéristique de relaxation du polymère) et $\eta_p = n_p kT \lambda$ (la viscosité due au polymère). Ainsi les modèles micro-macro peuvent être vus comme des moyens de relier les paramètres intervenant dans les modèles macro-macro à des caractéristiques des microstructures dans le fluide. En revanche, on ne connaît pas d'équivalent macroscopique au modèle FENE.

Avant d'entamer l'analyse mathématique de ces modèles, réécrivons-les complètement sous forme adimensionnée. Le modèle macro-macro Oldroyd-B s'écrit :

$$\begin{cases} \text{Re}(\partial_t u + u \cdot \nabla u) = -\nabla p + (1 - \epsilon)\Delta u + \text{div} \tau, \\ \text{div} u = 0, \\ \partial_t \tau + u \cdot \nabla \tau = \nabla u \tau + \tau \nabla u^T + \frac{\epsilon}{\text{We}}(\nabla u + \nabla u^T) - \frac{1}{\text{We}} \tau. \end{cases} \quad (9)$$

Le modèle micro-macro s'écrit :

$$\begin{cases} \text{Re}(\partial_t u + u \cdot \nabla u) = -\nabla p + (1 - \epsilon)\Delta u + \text{div} \tau, \\ \text{div} u = 0, \\ \tau = \frac{\epsilon}{\text{We}} (-\text{Id} + \mathbb{E}(X_t \otimes F(X_t))), \\ dX_t + u \cdot \nabla X_t = \left(\nabla u X_t - \frac{1}{2\text{We}} F(X_t) \right) dt + \frac{1}{\sqrt{\text{We}}} dW_t. \end{cases} \quad (10)$$

Les nombres adimensionnels sont le nombre de Reynolds $\text{Re} = \frac{\rho U L}{\eta}$, le nombre de Weissenberg $\text{We} = \frac{\lambda U}{L}$ (qui représente le rapport entre l'échelle de temps typique de relaxation des polymères, et l'échelle de temps de l'écoulement) et $\epsilon = \frac{\eta_p}{\eta}$, où U est une vitesse caractéristique de l'écoulement et $L = \sqrt{\frac{kT}{H}}$ une longueur caractéristique. Dans la suite, on considérera deux types de force F (avec le potentiel Π associé) : le modèle hookéen

$$F(X) = X \text{ et } \Pi(X) = \frac{|X|^2}{2}, \quad (11)$$

ou bien le modèle FENE

$$F(X) = \frac{X}{1 - |X|^2/b} \text{ et } \Pi(X) = -\frac{b}{2} \ln(1 - |X|^2/b). \quad (12)$$

Noter que le potentiel Π est radial et α -convexe, deux propriétés qui joueront un rôle important par la suite. Le modèle micro-macro (10) peut se réécrire de manière équivalente

comme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{Re}(\partial_t u + u \cdot \nabla u) = -\nabla p + (1 - \epsilon)\Delta u + \operatorname{div} \tau, \\ \operatorname{div} u = 0, \\ \tau = \frac{\epsilon}{\operatorname{We}} \left(-\operatorname{Id} + \int (X \otimes F(X)) \psi dX \right), \\ \partial_t \psi + u \cdot \nabla_x \psi = -\operatorname{div}_X \left(\left(\nabla u X - \frac{1}{2\operatorname{We}} F(X) \right) \psi \right) + \frac{1}{2\operatorname{We}} \Delta_X \psi, \end{array} \right. \quad (13)$$

où $\psi(t, x, X) dX$ est la loi de la variable aléatoire $X_t(x)$. L'équation différentielle stochastique sur X_t est remplacée par l'équation de Fokker-Planck associée sur sa densité de probabilité. Dans la suite, on appellera (10) la forme stochastique du modèle micro-macro, et (13) la forme Fokker-Planck du modèle micro-macro.

Remarque 1 *Noter que derrière le modèle micro-macro se cachent une hypothèse de séparation des échelles en espace (on suppose qu'en chaque point macroscopique se trouvent une infinité de chaînes de polymère sur lesquelles on peut faire une moyenne statistique pour calculer le tenseur des contraintes) et une hypothèse de séparation des échelles de temps (pour dériver le modèle du dumbell, on a supposé que la force qui s'exerce entre les deux billes dérive d'une énergie libre, et donc qu'un équilibre thermodynamique local - au niveau de la chaîne - a le temps de s'instaurer). De telles hypothèses sont nécessaires dans ce type d'approche pour pouvoir coupler les modèles. Concernant les échelles de temps, noter que pour le modèle coarse-grainé, l'échelle de temps typique pour le dumbell est du même ordre de grandeur que l'échelle de temps macroscopique d'observation de l'écoulement de fluide. En effet, le nombre de Weissenberg est typiquement compris entre 1 et 10.*

Remarque 2 *Nous avons signalé qu'on ne connaît pas de modèle macroscopique équivalent au modèle FENE. Etant donné le coût de calcul élevé de la discrétisation des modèles micro-macro (cf. section 1.2.3), les physiciens ont cherché à dériver des modèles macro-macro "proches" du modèle FENE. L'exemple le plus simple est le modèle FENE-P qui est obtenu à partir du modèle FENE en utilisant l'approximation de fermeture $\mathbb{E} \left(\frac{X_t}{1 - |X_t|^2/b} \right) \simeq \frac{\mathbb{E}(X_t)}{1 - \mathbb{E}(|X_t|^2)/b}$ (cf. [81, 18] et [TL33]). On obtient alors le modèle suivant (où $\sigma = \mathbb{E}(X_t \otimes X_t)$) :*

$$\begin{aligned} \tau &= \frac{\epsilon}{\operatorname{We}} \left(\frac{\sigma}{1 - \operatorname{tr}(\sigma)/b} - \operatorname{Id} \right), \\ \frac{\partial \sigma}{\partial t} + u \cdot \nabla \sigma &= \nabla u \sigma + \sigma \nabla u^T - \frac{1}{\operatorname{We}} \frac{\sigma}{1 - \operatorname{tr}(\sigma)/b} + \frac{1}{\operatorname{We}} \operatorname{Id}. \end{aligned} \quad (14)$$

1.2 Quelques résultats d'existence et de convergence des méthodes numériques

1.2.1 Existence et unicité de solutions

Les principales difficultés dans l'analyse mathématique des systèmes d'équations (9) et (10) (ou de la forme équivalente (13)) proviennent des termes de transport ($u \cdot \nabla X_t$ ou $u \cdot \nabla \tau$) et des termes non-linéaires ($\nabla u \tau$, $\nabla u X_t$ ou $F(X_t)$ pour la force FENE). L'état de l'art actuellement sur ces systèmes est limité à des résultats d'existence et unicité en temps petit (voir par exemple [85] pour les modèles macro-macro, [TL05, TL25] et [40, 20] pour les modèles micro-macro dans la version stochastique, ou [86, 67, 105, 69, 12, 13] pour les modèles micro-macro dans la version Fokker-Planck). On peut cependant signaler les résultats d'existence en temps long [70, 71, 74] pour un système d'équations modifié, où,

dans (9), la dérivée (appelée dérivée sur-convectée) $\partial_t \tau + u \cdot \nabla \tau - \nabla u \tau - \tau \nabla u^T$ est remplacée par la dérivée co-rotationnelle $\partial_t \tau + u \cdot \nabla \tau - W(u) \tau - \tau W(u)^T$ où $W(u) = \frac{1}{2}(\nabla u - \nabla u^T)$ est la vorticit , et dans (10), le terme $\nabla u X_t$ est remplac  par $W(u) X_t$. De meilleurs r sultats d'existence dans le cas d'une d riv e corotationnelle sont obtenus gr ce   des estim es suppl mentaires qui utilisent le fait que $(W(u) \tau + \tau W(u)^T) : \tau = 0$ (o  : d signe la double contraction, *i.e.* pour deux matrices A et B , $A : B = \text{tr}(AB^T)$). Noter cependant qu'il est g n ralement admis que pour les fluides polym riques, la d riv e co-rotationnelle n'est pas physique (par exemple, avec cette d riv e, $Z^{-1} \exp(-\Pi)$ est solution stationnaire quelque soit le champ de vitesse stationnaire).

Dans [TL05], nous avons prouv  l'existence locale en temps d'une solution au mod le micro-macro pour FENE, dans le cas particulier d'un  coulement cisail . On renvoie   [TL05, TL35] pour plus de d tails. Notons simplement un point int ressant concernant l'importance du param tre b dans la force FENE. Il appara t [TL25] que si $b < 2$, alors le processus stochastique X_t solution de l' quation diff rentielle stochastique

$$dX_t = -\frac{X_t}{1 - |X_t|^2/b} dt + dW_t$$

peut atteindre l'extensibilit  maximale en temps fini : $\mathbb{P}(\exists t > 0, |X_t|^2 = b) = 1$. Ceci implique qu'on peut construire plusieurs solutions   l' quation diff rentielle stochastique, qui restent ou non dans la boule de centre 0 et de rayon \sqrt{b} . En pratique le param tre b est typiquement plus grand que 10, de sorte que l'objectif initial de la force FENE qui est de garder une extensibilit  finie au polym re est bien atteint.

1.2.2 Discr tisation

Les m thodes num riques g n ralement employ es pour discr tiser (9), (10) ou (13) ont pour point commun d'utiliser un algorithme s gr g  :   chaque pas de temps, calcul de (u, p) puis calcul de τ . Les quantit s macroscopiques (u, p, τ) sont typiquement discr tis es en utilisant des m thodes de type  l ments finis. De mani re tr s grossi re, les principales difficult s que l'on rencontre pour la discr tisation sont :

- Une condition inf-sup doit  tre satisfaite par les espaces de discr tisation en vitesse, pression et contrainte (dans la limite o  ϵ est proche de 1).
- Les termes d'advection doivent  tre discr tis s par des m thodes stables sans  tre trop diffusives.
- Les termes non-lin aires induisent  galement des difficult s. Ainsi, on est typiquement conduit   expliciter le terme $\nabla u \tau + \tau \nabla u^T$ dans le mod le Oldroyd-B.

On renvoie   la section 6.2.2 de [TL35] pour une discussion des m thodes num riques utilis es pour contourner ces difficult s. Les simulations num riques sur des  coulements complexes ( coulement sur une marche,  coulement autour d'un cylindre) restent encore aujourd'hui difficiles   r aliser, notamment quand le nombre de Weissenberg est grand (ce qui est commun ment appel  le *High Weissenberg Number Problem* ou HWNP). Il n'est pas clair en g n ral de savoir si les difficult s proviennent de la m thode de discr tisation, ou du mod le lui-m me, et il y a donc un int r t   s'assurer de la stabilit  des sch mas employ s. Nous reviendrons sur ce point dans la Section 1.4.2, o  nous proposerons un nouveau crit re pour juger de la stabilit  d'un sch ma num rique.

Discutons maintenant plus sp cifiquement la discr tisation des mod les microscopiques (10) ou (13). La discr tisation du mod le micro-macro sous la forme Fokker-Planck utilise typiquement des m thodes spectrales [72, 92, 26, 73, 61]. La principale difficult  pour l'approche Fokker-Planck concerne le passage en grande dimension. En effet, pour les applications quantitatives, le mod le du *dumbell* est trop simpliste, et il faut avoir recourt   des mod les similaires pour une cha ne de billes reli es par des ressorts (et non pas juste deux

billes et un ressort). Dans ce cas, l'équation de Fokker Planck est une équation aux dérivées partielles en dimension grande (typiquement trois fois le nombre de ressorts) qui ne peut pas être discrétisée par des techniques standards. Deux approches ont été utilisées dans le cadre des fluides complexes : l'approche *sparse-tensor product* (cf. [36, 102, 23]) et une approche originale s'apparentant à la méthode *Singular Value Decomposition* [4, 5], que nous détaillons ci-dessous (cf. Section 1.2.4).

La discrétisation du modèle micro-macro sous la forme stochastique est basée sur la méthode CONNFFESSIT (pour (Calculation Of Non-Newtonian Flow : Finite Elements and Stochastic SIMulation Technique) introduite dans [63] sous sa forme lagrangienne (X_t est indexé par le pied de la caractéristique et, numériquement, une méthode lagrangienne est utilisée pour suivre les polymères le long des caractéristique), et dans [55] sous sa forme eulérienne (X_t est indexé par une position macroscopique, et le terme d'advection $u \cdot \nabla X_t$ est explicitement discrétisé). Le principe est d'utiliser une méthode d'éléments finis pour discrétiser les équations sur (u, p) et une méthode de Monte Carlo pour estimer τ , ce qui nécessite d'introduire, en chaque noeud x_i de discrétisation pour τ , un grand nombre de réalisations $(X_t^j(x_i))_{1 \leq j \leq M}$ du processus stochastique $X_t(x_i)$, qui évoluent sous des mouvements browniens $(W_t^j)_{1 \leq j \leq M}$ indépendants. Une approximation de τ est alors obtenue par moyenne empirique :

$$\tau(t, x_i) \simeq \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M X_t^j(x_i) \otimes F(X_t^j(x_i)).$$

Pour analyser la convergence de la méthode, il faut donc tenir compte de trois types de discrétisation : une discrétisation en espace (paramètre h), une discrétisation en temps (paramètre δt) et une approximation de l'espérance par une moyenne empirique (paramètre M). Dans [TL01, TL04], nous montrons que, dans le cas particulier d'un écoulement cisailé et pour une discrétisation \mathbb{P}_1 , l'erreur en norme L^2 ($(\mathbb{E} \int |u(n\delta t) - u_h^n|^2)^{1/2}$) peut être majorée par $C \left(h^2 + \delta t + \frac{1}{\sqrt{M}} \right)$. Noter qu'avec cette méthode numérique, la vitesse discrétisée u_h^n est une variable aléatoire, et que les variables aléatoires $(X_{n\delta t}^j(x_i))_{1 \leq i \leq I, 1 \leq j \leq M}$ ne sont pas indépendantes, ce qui complique l'analyse de ce système de particules. Ces résultats ont été étendus à un écoulement général dans [68].

Comme dans toute méthode de type Monte Carlo, la variance des résultats est une composante de l'erreur importante. Une méthode de réduction de variance par variable de contrôle a été proposée dans [21]. L'idée consiste à introduire des processus $(\tilde{X}_t^j(x_i))_{1 \leq j \leq M}$ couplés aux processus $(X_t^j(x_i))_{1 \leq j \leq M}$ car évoluant sous les mêmes mouvements browniens, mais pour lesquels on sait calculer facilement la contrainte associée $\tilde{\tau} = \lim_{M \rightarrow \infty} \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \tilde{X}_t^j \otimes \tilde{F}(\tilde{X}_t^j)$. La méthode de réduction de variance par variable de contrôle consiste alors à écrire :

$$\tau \simeq \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \left(X_t^j \otimes F(X_t^j) - \tilde{X}_t^j \otimes \tilde{F}(\tilde{X}_t^j) \right) + \tilde{\tau}.$$

Typiquement, on peut considérer comme variable de contrôle le processus qui reste à l'équilibre ($\tilde{F} = F$ et $u = 0$ dans l'équation différentielle stochastique sur \tilde{X}_t), ou bien le processus qui évolue avec une force \tilde{F} qui est proche de la vraie force F , mais qui est telle qu'on sait calculer par un modèle macroscopique la contrainte $\tilde{\tau}$ associée. Par exemple, F est la force FENE, et \tilde{F} est la force hookéenne ou la force FENE-P (cf. Remarque 2 et [TL33]). Le calcul de $\tilde{\tau}$ se fait alors par une méthode déterministe classique (éléments finis).

Un dernier point concernant la variance des résultats est l'influence de la dépendance des mouvements browniens en la variable d'espace. Dans la méthode CONNFFESSIT originale [63], les auteurs utilisent des mouvements browniens indépendants d'un point à l'autre

	MACRO	MICRO-MACRO	
Modélisation	faible	riche	
Utilisation actuelle	industrie	universitaire	
		discrétisation par Monte Carlo	discrétisation de Fokker-Planck
coût calcul	faible	élevé	moyen
difficultés numériques	HWNP	variance, HWNP	réservé à la dimension petite, HWNP

TAB. 1 – Intérêt comparé des différentes approches de modélisation des fluides viscoélastiques.

de l'espace (cas complètement décorrélé). Une remarque importante de [55] est qu'en utilisant le même mouvement brownien en tous les points d'espace (cas complètement corrélé) la variance sur la vitesse est nettement réduite. Cependant, on observe que dans le même temps, la variance sur la contrainte est augmentée. Ces observations nous ont conduits à analyser dans [TL06] l'influence de la matrice de corrélation en espace des mouvements browniens sur la variance des quantités macroscopiques vitesse et contrainte, dans le cas d'un écoulement cisailé et pour une discrétisation \mathbb{P}_1 . Dans la limite d'un nombre de réalisations infini, cette corrélation n'intervient plus (car dans la moyenne pour calculer τ n'interviennent que des processus X_t pris au même point). On peut donc la considérer comme un paramètre numérique. Nous montrons que la corrélation en espace des mouvements browniens influence effectivement la variance des résultats, et nous proposons une corrélation optimale pour le calcul de la contrainte. Ces résultats ont été généralisés dans [62].

1.2.3 Modèles micro-macro ou modèles macro-macro ?

A ce stade, nous pouvons dresser un premier bilan des avantages et inconvénients des différentes approches de modélisation que nous avons évoquées.

L'intérêt essentiel de l'approche micro-macro comparée à l'approche macro-macro réside dans la nouvelle richesse des modèles, qui sont fondés sur des méthodologies bien établies de la physique statistique. Avec l'approche micro-macro, il est possible de tester l'influence de paramètres microscopiques (caractéristiques des microstructures) sur le comportement macroscopique. On peut donc espérer (et ceci est vérifié en pratique [58, 59]) une plus grande qualité prédictive des modèles micro-macro par rapport aux modèles macro-macro.

D'un point de vue numérique, les modèles micro-macro restent cependant très coûteux. Ils nécessitent en effet l'ajout de variables supplémentaires (variables microscopiques) pour décrire la conformation des microstructures, en grand nombre puisqu'il s'agit ensuite d'en faire une moyenne pour obtenir les quantités macroscopiques. Ceci implique un coût calcul et en mémoire très important, ce qui les rend pour le moment inutilisable dans les applications pratiques industrielles.

Ceci est résumé de manière grossière et synthétique dans le Tableau 1.

Au vu de ces résultats, il semble intéressant de coupler les avantages des modèles macro-macro et micro-macro en n'utilisant un modèle micro-macro que dans les zones d'écoulement où cela est nécessaire. Nous avons proposé dans [TL16] une approche adap-

tative qui permet, au cours de la simulation, de choisir le modèle le plus adapté dans chacune des mailles de discrétisation en utilisant des estimateurs *a posteriori*. Plus précisément, il s'agit d'utiliser soit le modèle micro-macro FENE, soit le modèle macro-macro FENE-P (cf. Remarque 2). Des tests numériques sur un écoulement cisaillé préliminaires donnent des résultats très encourageants (cf. [TL16]), bien qu'il reste à valider le principe de la méthode sur des cas plus complexes, et qu'aucune analyse numérique rigoureuse ne permette de justifier la méthode.

1.2.4 Au sujet d'une méthode de discrétisation non-linéaire des équations aux dérivées partielles en grande dimension

Nous terminons cette section en discutant une méthode introduite récemment dans [4, 5] pour discrétiser l'équation de Fokker-Planck (cf. (13)) pour un modèle comprenant plusieurs billes et ressorts, auquel cas l'équation de Fokker-Planck est une équation aux dérivées partielles en grande dimension. Dans [TL38], nous analysons cette méthode en montrant comment elle est reliée à des algorithmes gloutons utilisés en théorie de l'approximation.

Détaillons cela sur le cas du problème de Poisson en dimension $N = 2$, pour simplifier. Il s'agit de résoudre le problème :

$$\text{Trouver } g \in H_0^1(\Omega) \text{ tel que } \begin{cases} -\Delta g = f & \text{dans } \Omega, \\ g = 0 & \text{sur } \partial\Omega, \end{cases} \quad (15)$$

où $f \in L^2(\Omega)$, $\Omega = \Omega_x \times \Omega_y$ avec $\Omega_x \subset \mathbb{R}$ et $\Omega_y \subset \mathbb{R}$ deux domaines bornés. L'idée est de chercher la solution sous la forme d'une somme de produit tensoriel $g = \sum_{k \geq 1} r_k \otimes s_k$ (ou $r_k \otimes s_k(x, y) = r_k(x)s_k(y)$) en calculant itérativement les termes de la somme. L'algorithme proposé dans [4, 5] est le suivant (l'exposant o indique que c'est une version orthogonalisée de l'algorithme, cf. étape 2 de l'algorithme) : poser $f_0^o = f$, et itérer sur $n \geq 1$,

1. Trouver $r_n^o \in H_0^1(\Omega_x)$ et $s_n^o \in H_0^1(\Omega_y)$ tels que : pour toute fonction $(r, s) \in H_0^1(\Omega_x) \times H_0^1(\Omega_y)$

$$\int_{\Omega} \nabla(r_n^o \otimes s_n^o) \cdot \nabla(r_n^o \otimes s + r \otimes s_n^o) = \int_{\Omega} f_{n-1}^o(r_n^o \otimes s + r \otimes s_n^o). \quad (16)$$

2. Résoudre le problème de Galerkin suivant sur la base $(r_1^o \otimes s_1^o, \dots, r_n^o \otimes s_n^o)$: trouver $(\alpha_1, \dots, \alpha_n) \in \mathbb{R}^n$ tel que

$$(\alpha_1, \dots, \alpha_n) = \arg \min_{(\beta_1, \dots, \beta_n) \in \mathbb{R}^n} \left(\frac{1}{2} \int_{\Omega} \left| \nabla \left(\sum_{k=1}^n \beta_k (r_k^o \otimes s_k^o) \right) \right|^2 - \int_{\Omega} f \sum_{k=1}^n \beta_k (r_k^o \otimes s_k^o) \right). \quad (17)$$

3. Poser $f_n^o = f + \Delta \sum_{k=1}^n \alpha_k r_k^o \otimes s_k^o$.
4. Si $\|f_n^o\|_{H^{-1}(\Omega)} \geq \varepsilon$, alors aller à l'itération $n + 1$, sinon s'arrêter.

La méthode est effectivement utilisable en grande dimension car le problème (16) consiste à résoudre, en dimension N , un système (non-linéaire) de N équations, et non pas un problème (linéaire) de taille exponentielle en N , comme ce serait le cas pour une méthode standard (par exemple, des différences finies sur une grille tensorisée). Il semble que cette méthode donne de bons résultats sur des problèmes en grande dimension [4, 5].

Une remarque fondamentale est que le problème variationnel (16) est l'équation d'Euler-Lagrange associée au problème de minisation : Trouver $r_n^o \in H_0^1(\Omega_x)$ et $s_n^o \in H_0^1(\Omega_y)$ tels que,

$$(r_n^o, s_n^o) = \arg \min_{(r, s) \in H_0^1(\Omega_x) \times H_0^1(\Omega_y)} \left(\frac{1}{2} \int_{\Omega} |\nabla(r \otimes s)|^2 - \int_{\Omega} f_{n-1}^o(r \otimes s) \right). \quad (18)$$

Dans [TL38], nous montrons que :

- L'algorithme en remplaçant le problème variationnel (16) par le problème de minisation associé (18) est l'algorithme *Orthogonal Greedy Algorithm* introduit en théorie de l'approximation [14, 33, 38, 97]. En utilisant des résultats de [38], nous en déduisons que l'algorithme converge, et donnons un taux de convergence pour une certaine classe de seconds membres f . Plus précisément, on montre que

$$\lim_{n \rightarrow \infty} f_n^o = 0 \text{ dans } H^{-1}(\Omega)$$

et que si f est tel que g solution de (15) est un élément de \mathcal{L}^1 où

$$\mathcal{L}^1 = \left\{ g = \sum_{k \geq 0} c_k (u_k \otimes v_k), \text{ où } u_k \in H_0^1(\Omega_x), v_k \in H_0^1(\Omega_y), \right. \\ \left. \int_{\Omega} |\nabla(u_k \otimes v_k)|^2 = 1 \text{ et } \sum_{k \geq 0} |c_k| < \infty \right\}$$

est un sous-espace de $H_0^1(\Omega)$, on a

$$\left(\int_{\Omega} |\nabla g_n^o|^2 \right)^{1/2} \leq \frac{\|g\|_{\mathcal{L}^1}}{\sqrt{n}},$$

où $\|g\|_{\mathcal{L}^1} = \inf \left\{ \sum_{k \geq 0} |c_k|, g = \sum_{k \geq 0} c_k (u_k \otimes v_k), \text{ où } \int_{\Omega} |\nabla(u_k \otimes v_k)|^2 = 1 \right\}$ et $g_n^o \in H_0^1(\Omega)$ est la solution du problème de Poisson $-\Delta g_n^o = f_n^o$.

- L'algorithme original (avec (16)) peut ne pas converger si des "mauvaises" solutions du problème d'Euler-Lagrange sont considérées. En reliant cet algorithme à la décomposition en valeurs singulières, nous montrons que l'algorithme de point fixe utilisé dans [4, 5] pour résoudre le problème non-linéaire (16) peut effectivement conduire à des "mauvaises" solutions, si la condition initiale du point fixe est mal choisie (la situation est similaire à celle du calcul de la plus grande valeur propre d'une matrice par puissance itérée : si la condition initiale est orthogonale au vecteur propre associée à la plus grande valeur propre, l'algorithme ne converge pas vers la bonne solution).

Plusieurs problèmes restent ouverts, en particulier sur la convergence de l'algorithme original (avec (16)), et notamment dans le cas où il est utilisé sur des problèmes non-autoadjoints (qui ne sont pas associés à un problème de minimisation) ce qui est typiquement le cas de l'équation de Fokker-Planck dans (13). Nous travaillons en ce moment sur l'utilisation de ce type de méthode pour des problèmes de grande dimension en finance (évaluation d'options sur panier), et en dynamique moléculaire (calcul de l'*isocommittor*).

1.3 Comportement en temps long

Nous nous sommes intéressé au comportement en temps long de ces modèles pour deux raisons. Tout d'abord, d'un point de vue théorique, la compréhension du comportement en temps long nécessite d'exhiber des énergies bien adaptées au système. De plus, d'un point de vue numérique, beaucoup de simulations consistent à obtenir un état stationnaire sur une géométrie type par un calcul instationnaire en temps long. Dans cette section, nous nous concentrons sur le comportement en temps long du problème micro-macro (dans sa forme stochastique (10) ou Fokker-Planck (13)). Nous utiliserons cette analyse dans la section suivante 1.4 pour étudier le comportement en temps long de modèles macro-macro. Cette section est basée sur les articles [TL09, TL11].

1.3.1 Une "mauvaise" estimée d'énergie

Nous commençons par dériver une estimée d'énergie "intuitive" sur le système (10). On suppose dans cette section des conditions aux bords de Dirichlet homogènes sur la vitesse (condition de non glissement). En multipliant l'équation sur la vitesse par u et en intégrant sur le domaine en espace supposé borné et noté \mathcal{D} dans la suite, on obtient classiquement

$$\frac{\text{Re}}{2} \frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + (1 - \epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 = - \int_{\mathcal{D}} \tau : \nabla u. \quad (19)$$

Par un calcul d'Itô, on vérifie que la dérivée de l'énergie potentielle stockée dans les ressorts satisfait :

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(\Pi(X_t)) + \frac{1}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(|F(X_t)|^2) = \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(F(X_t) \cdot \nabla u X_t) + \frac{1}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \Delta \Pi(X_t). \quad (20)$$

On rappelle que Π est le potentiel associé à la force F ($F = \nabla \Pi$). En utilisant le fait que $\tau = \frac{\epsilon}{\text{We}} (-\text{Id} + \mathbb{E}(X_t \otimes F(X_t)))$ et que le potentiel Π est radial (ce qui implique que τ est bien un tenseur symétrique), on vérifie que $\tau : \nabla u = \mathbb{E}(F(X_t) \cdot \nabla u X_t)$, et donc on obtient, par combinaison linéaire de (19) et (20) :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(\Pi(X_t)) \right) + (1 - \epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(|F(X_t)|^2) \\ = \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \mathbb{E}(\Delta \Pi(X_t)). \end{aligned} \quad (21)$$

Etant donné que Π est α -convexe, le terme au membre de droite de (21) (qui provient du terme d'Itô dans (20)) est strictement positif. Par conséquent, cette estimée d'énergie semble difficile à utiliser pour étudier le comportement du système en temps long, et en tout cas pour prouver la convergence vers l'état stationnaire attendu, à savoir $u = 0$ et X_t de loi $Z^{-1} \exp(-\Pi)$. On s'attend à ce que le système soit dissipatif (aucune force extérieure, ni conditions aux bords ne sont appliquées) et ceci ne semble pas être le cas sur l'estimée (21).

Avant de montrer comment on peut éliminer ce terme d'Itô, on réécrit l'estimée (21) en terme de la densité de probabilité ψ (ce qui peut d'ailleurs être obtenu directement à partir de (13)) :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Pi \psi \right) + (1 - \epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} |F|^2 \psi \\ = \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Delta \Pi \psi, \end{aligned} \quad (22)$$

où $\int_{\mathbb{R}^d}$ désigne une intégrale sur la variable microscopique X (d étant la dimension de l'espace ambiant : $\mathcal{D} \subset \mathbb{R}^d$).

Remarque 3 *L'estimée d'énergie (21) reste intéressante sur un intervalle de temps borné. Elle constitue typiquement un des ingrédients des preuves d'existence de solutions évoquées dans la Section 1.2.1.*

1.3.2 Estimées d'entropie : le cas de l'équation de Fokker-Planck découplée

Pour dériver une estimée d'énergie permettant d'étudier le comportement du système en temps long, nous avons utilisé des estimées dites d'entropie, ce qui nécessite de travailler sur le système micro-macro sous sa forme Fokker-Planck (13), plutôt que sous sa forme stochastique (10).

Nous commençons par rappeler le principe de la méthode sur l'équation de Fokker-Planck seule, pour un champ de vitesse donné (cas linéaire). On renvoie aux références [7, 6] pour des exposés plus complets.

L'équation considérée est :

$$\partial_t \psi = \operatorname{div}_X \left(\left(-\kappa X + \frac{1}{2\operatorname{We}} \nabla \Pi(X) \right) \psi \right) + \frac{1}{2\operatorname{We}} \Delta_X \psi. \quad (23)$$

Ici, ψ est une fonction du temps t et de la variable microscopique X seulement, et κ est un tenseur représentant le gradient de vitesse (supposé connu). Une approche classique pour étudier le comportement en temps long de cette équation consiste à introduire l'entropie de ψ par rapport à une solution stationnaire ψ_∞ de (23) :

$$H(\psi|\psi_\infty) = \int_{\mathbb{R}^d} \ln \left(\frac{\psi}{\psi_\infty} \right) \psi.$$

Remarquer que $H \geq 0$ et que $H = 0$ si et seulement si $\psi = \psi_\infty$. On rappelle l'inégalité (de Csiszar-Kullback)

$$\int_{\mathbb{R}^d} |\psi - \psi_\infty| \leq \sqrt{2H(\psi|\psi_\infty)}. \quad (24)$$

En utilisant le fait que ψ_∞ est une solution stationnaire, on vérifie que

$$\frac{dH(\psi|\psi_\infty)}{dt} = -\frac{1}{2\operatorname{We}} \int \left| \nabla \ln \left(\frac{\psi}{\psi_\infty} \right) \right|^2 \psi. \quad (25)$$

Le membre de droite est négatif, et l'entropie H décroît donc au cours du temps.

Pour obtenir la convergence de H vers 0 (et donc de ψ vers ψ_∞ par (24)) on a ensuite besoin d'une inégalité de Sobolev logarithmique, dont il faut vérifier si elle est satisfaite pour la fonction ψ_∞ que l'on considère : il existe une constante $\rho > 0$ telle que pour toute fonction ϕ positive et d'intégrale 1,

$$\int \ln \left(\frac{\phi}{\psi_\infty} \right) \phi \leq \frac{1}{2\rho} \int \left| \nabla \ln \left(\frac{\phi}{\psi_\infty} \right) \right|^2 \phi. \quad (26)$$

En utilisant (26) dans (25), on en déduit la convergence exponentielle de H vers 0 :

$$H(\psi(t, \cdot)|\psi_\infty) \leq H(\psi(0, \cdot)|\psi_\infty) \exp \left(-\frac{\rho}{\operatorname{We}} t \right).$$

La difficulté dans cette approche est bien sûr d'établir l'inégalité fonctionnelle (26), notamment quand on sait de ψ_∞ seulement qu'elle est une solution stationnaire de (23).

Avant de rappeler quelques critères bien connus pour établir (26) on donne une définition précise de l'inégalité de Sobolev logarithmique, pour de futures références.

Définition 4 *On dit que la mesure ν satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique de constante $\rho > 0$ (noté par la suite $ISL(\rho)$) si et seulement si, pour toute mesure μ telle que μ est absolument continue par rapport à ν (noté $\mu \ll \nu$ dans la suite)*

$$H(\mu|\nu) \leq \frac{1}{2\rho} I(\mu|\nu)$$

où $H(\mu|\nu) = \int \ln \left(\frac{d\mu}{d\nu} \right) d\mu$ est l'entropie de la mesure μ par rapport à la mesure ν et $I(\mu|\nu) = \int \left| \nabla \ln \left(\frac{d\mu}{d\nu} \right) \right|^2 d\mu$ l'information de Fisher de la mesure μ par rapport à la mesure ν .

Avec un léger abus de notation, on dit qu'une densité de probabilité satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique si la mesure associée satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique et pour deux densités de probabilité ψ et ϕ , on note l'entropie des mesures associées $H(\psi|\phi)$.

On rappelle le critère dit de Bakry-Emery :

Proposition 5 *Soit Π une fonction α -convexe, au sens où pour tout vecteur X , $X^T \nabla^2 \Pi X \geq \alpha |X|^2$ (où $\nabla^2 \Pi$ désigne la Hessienne de Π). Alors la densité de probabilité $\psi_\infty \propto \exp(-\Pi)$ satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique pour une constante $\rho \geq \alpha$.*

On rappelle également le critère perturbatif de Holley-Stroock :

Proposition 6 *Soit Π une fonction telle que la densité de probabilité $\psi_\infty \propto \exp(-\Pi)$ satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique de constante ρ . Soit une fonction $\tilde{\Pi}$ bornée et la densité de probabilité $\tilde{\psi}_\infty \propto \exp(-\Pi + \tilde{\Pi})$. Alors $\tilde{\psi}_\infty$ satisfait également une inégalité de Sobolev logarithmique de constante $\tilde{\rho} \geq \rho \exp(-\text{osc } \tilde{\Pi})$ où $\text{osc } \tilde{\Pi} = \sup \tilde{\Pi} - \inf \tilde{\Pi}$.*

En appliquant ces critères sur le problème de Fokker-Planck (23), on vérifie que :

- si κ est nul ou antisymétrique, ψ converge exponentiellement vite vers $\psi_\infty \propto \exp(-\Pi)$ (puisque Π est α -convexe).
- si κ est symétrique, alors $\psi_\infty \propto \exp(-\Pi + \text{We} X^T \kappa X)$ et donc on obtient convergence exponentielle dans le cas FENE pour tout We , et dans le cas hookéen sous l'hypothèse que les valeurs propres de κ sont strictement plus petites que $\frac{1}{2\text{We}}$.
- si κ est quelconque, la vitesse exponentielle est obtenue sous l'hypothèse qu'il existe un état stationnaire ψ_∞ qui satisfait $\|\ln(\psi_\infty \exp(\Pi))\|_{L^\infty} < \infty$, ce qui n'est pas très explicite... On peut cependant montrer ce résultat pour le modèle FENE, sous l'hypothèse que la partie symétrique de κ est assez petite (cf. Proposition 9 ci-dessous).

1.3.3 Estimées d'entropie : le cas couplé avec $u = 0$ sur $\partial\mathcal{D}$

Nous revenons maintenant au problème couplé. On suppose dans un premier temps que $u = 0$ sur le bord $\partial\mathcal{D}$. L'état stationnaire attendu est donc $u_\infty = 0$ et $\psi_\infty \propto \exp(-\Pi)$. Nous reprenons la "mauvaise" estimée d'énergie de la section 1.3.1 en introduisant l'entropie à la place de l'énergie stockée dans les ressorts. Ceci consiste à remplacer dans (22) le terme $\int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Pi \psi$ par $\int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi$ (qui est égale, à une constante additive près, à $\int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Pi \psi + \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \psi \ln \psi$). Ainsi, un calcul similaire à ceux décrits dans la section précédente donne (comparer à (20)) :

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi + \frac{1}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \left| \nabla_X \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \right|^2 \psi = \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} F(X) \cdot \nabla u X \psi \quad (27)$$

et par combinaison linéaire de (19) et (27), on obtient (comparer à (22)) :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi \right) + (1-\epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \left| \nabla_X \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \right|^2 \psi = 0. \quad (28)$$

L'énergie $\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Pi \psi$ ne décroît pas au cours du temps (cf. (22)), mais l'énergie libre $\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi$ est bien dissipée par le système (cf. (28)).

En utilisant une inégalité de Sobolev logarithmique pour la mesure ψ_∞ (valable puisque Π est α -convexe), et l'inégalité de Poincaré

$$\int_{\mathcal{D}} |u|^2 \leq C_{\text{PI}}(\mathcal{D}) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2, \quad (29)$$

on en déduit la convergence à vitesse exponentielle de (u, ψ) vers l'équilibre $(u_\infty, \psi_\infty) = (0, Z^{-1} \exp(-\Pi))$.

Remarque 7 Dans cette approche basée sur l'entropie, on voit qu'il est nécessaire de travailler avec l'équation micro-macro sous la forme Fokker-Planck (13). Il serait intéressant (notamment en vue de l'analyse du comportement en temps long d'une discrétisation de type CONNFFESSIT) de parvenir à des résultats équivalents sur la forme stochastique (10). Cela ne semble possible que dans des cas très simples (cf. [TL09, TL11]).

Remarque 8 Nous avons présenté les arguments en considérant l'entropie

$$H(\psi|\psi_\infty) = \int_{\mathbb{R}^d} h\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi_\infty$$

pour $h(x) = x \ln(x) - x + 1$. Il est en fait possible de considérer des entropies plus générales, où la fonction $h : \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}_+$ est une fonction strictement convexe de classe \mathcal{C}^2 telle que $h(1) = h'(1) = 0$ (cf. [TL11] et [7]). Un exemple classique est $h(x) = (x - 1)^2$. Dans le cas linéaire de l'équation de Fokker Planck découplée (cf. Equation 23 et Section 1.3.2), on montre que

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathbb{R}^d} h\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi_\infty = -\frac{1}{2\text{We}} \int h''\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \left| \nabla \left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \right|^2 \psi_\infty,$$

et l'inégalité fonctionnelle nécessaire pour conclure à la convergence exponentielle est de la forme

$$\int h\left(\frac{\phi}{\psi_\infty}\right) \psi_\infty \leq \frac{1}{2\rho} \int h''\left(\frac{\phi}{\psi_\infty}\right) \left| \nabla \left(\frac{\phi}{\psi_\infty}\right) \right|^2 \psi_\infty.$$

Dans le cas $h(x) = (x - 1)^2$ cette inégalité est une inégalité de Poincaré pour la mesure $\psi_\infty(X) dX$. Les propositions 5 et 6 sont également valables pour les inégalités de Poincaré, et on peut donc conclure à la convergence exponentielle en n'utilisant une autre entropie que l'entropie "physique" (correspondant au choix $h(x) = x \ln(x) - x + 1$). Cependant, ceci n'est valable que pour le cas linéaire de l'équation de Fokker-Planck découplée. Dans le cas non-linéaire considéré dans cette section (le couplage avec l'équation en vitesse induit en effet une nonlinéarité), il semble que la bonne entropie pour pouvoir mener les calculs est l'entropie "physique". Cette remarque est également valable pour l'étude de la convergence de l'algorithme Adaptive Biasing Force que (cf. Section 2.2.4 ci dessous).

1.3.4 Estimées d'entropie : le cas couplé avec $u \neq 0$ sur $\partial\mathcal{D}$

Nous discutons ici comment les résultats de la section précédente peuvent être généralisés dans le cas de conditions aux limites sur la vitesse constantes en temps mais non nulles. Dans cette situation, l'état stationnaire (u_∞, ψ_∞) n'est plus l'équilibre $(0, Z^{-1} \exp(-\Pi))$, mais est simplement défini comme une solution stationnaire des équations (13) satisfaisant les conditions aux limites. Pour simplifier la présentation et sans perte de généralité, on fixe des valeurs aux paramètres pour la suite de cette section : $\text{Re} = 1/2$, $\text{We} = 1$ et $\epsilon = 1/2$.

En cherchant à imiter le raisonnement de la section précédente, on calcule (comparer à (28)) :

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \int_{\mathcal{D}} |\bar{u}|^2 + \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi \right) + \int_{\mathcal{D}} |\nabla \bar{u}|^2 + \frac{1}{2} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \left| \nabla_X \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \right|^2 \psi \\ &= - \int_{\mathcal{D}} \bar{u} \cdot \nabla u_\infty \bar{u} - \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \bar{u} \cdot \nabla_x (\ln \psi_\infty) \bar{\psi} \\ & \quad - \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} (\nabla_X (\ln \psi_\infty) + \nabla \Pi(X)) \cdot \nabla \bar{u} X \bar{\psi}, \end{aligned} \tag{30}$$

où $\bar{u}(t, x) = u(t, x) - u_\infty(x)$ et $\bar{\psi}(t, x, X) = \psi(t, x, X) - \psi_\infty(x, X)$. Comparé à la situation $u = 0$ sur $\partial\Omega$, deux nouvelles difficultés apparaissent : (i) il faut contrôler les termes supplémentaires dans l'estimée (cf. le membre de droite de (30)) ; (ii) il faut prouver une inégalité de Sobolev logarithmique pour ψ_∞ .

Nous détaillons une situation pour laquelle on arrive à prouver la convergence exponentielle vers l'équilibre, en renvoyant à [TL11] pour d'autres résultats. On considère le modèle FENE. On fait l'hypothèse que les conditions aux limites sont telles qu'on peut supposer l'écoulement stationnaire homogène, *i.e.* $u_\infty(x) = \kappa x$ (avec κ une matrice de trace nulle). Par conséquent, ψ_∞ ne dépend pas de la variable d'espace x . Ainsi, le deuxième terme au membre de droite de (30) est nul. Le premier terme peut être contrôlé par le membre de gauche si κ est suffisamment petit, on utilisant une inégalité de Poincaré pour \bar{u} . Pour estimer le dernier terme, ainsi que pour prouver une inégalité de Sobolev logarithmique pour ψ_∞ (au vu de la Proposition 6), il faut donc contrôler $\|\nabla_X \ln(\psi_\infty \exp(\Pi))\|_{L^\infty}$. C'est l'objet de la proposition suivante :

Proposition 9 *On considère le modèle FENE dans un écoulement stationnaire homogène ($u_\infty(x) = \kappa x$). On suppose que la matrice κ est telle que $|\kappa^s| < 1/2$ (où $\kappa^s = \frac{1}{2}(\kappa + \kappa^T)$). Alors, il existe une unique solution positive $\psi_\infty \in \mathcal{C}^2(\mathcal{B}(0, \sqrt{b}))$ de l'équation*

$$-\operatorname{div} \left(\left(\kappa X - \frac{1}{2} \nabla \Pi(X) \right) \psi_\infty(X) \right) + \frac{1}{2} \Delta \psi_\infty(X) = 0 \text{ dans la boule } \mathcal{B}(0, \sqrt{b}),$$

normalisée par $\int_{\mathcal{B}(0, \sqrt{b})} \psi_\infty = 1$, et dont le comportement au bord est caractérisé par :

$$\inf_{\mathcal{B}(0, \sqrt{b})} \frac{\psi_\infty}{\exp(-\Pi)} > 0, \quad \sup_{\mathcal{B}(0, \sqrt{b})} \left| \nabla \left(\frac{\psi_\infty}{\exp(-\Pi)} \right) \right| < \infty.$$

De plus, cette solution vérifie : $\forall X \in \mathcal{B}(0, \sqrt{b})$,

$$\left| \nabla \left(\ln \left(\frac{\psi_\infty(X)}{\exp(-\Pi(X))} \right) \right) - 2\kappa^s X \right| \leq \frac{2\sqrt{b} \|\kappa, \kappa^T\|}{1 - 2|\kappa^s|},$$

où $[\cdot, \cdot]$ désigne le crochet de commutation : $[\kappa, \kappa^T] = \kappa \kappa^T - \kappa^T \kappa$.

La preuve est basée sur un procédé de régularisation autour de la frontière de la boule, et sur une estimée *a priori* utilisant un principe du maximum pour l'équation satisfaite par $\left| \nabla \ln \left(\frac{\psi_\infty(X)}{\exp(-\Pi(X) + X^T \kappa^s X)} \right) \right|^2$ (estimée de Bernstein). En utilisant ce résultat, on montre alors :

Théorème 10 *On considère le modèle FENE et on suppose que l'écoulement stationnaire est homogène ($u_\infty(x) = \kappa x$). Si $|\kappa^s| < \frac{1}{2}$, ψ_∞ est la solution stationnaire construite dans la Proposition 9 et*

$$M^2 b^2 \exp(4bM) + C_{\text{PI}}(\mathcal{D}) |\kappa^s| < 1$$

où $C_{\text{PI}}(\mathcal{D})$ est la constante dans l'inégalité de Poincaré (29) et $M = 2|\kappa^s| + \frac{2\|\kappa, \kappa^T\|}{1 - 2|\kappa^s|}$, alors u converge exponentiellement vite vers u_∞ en norme L_x^2 et l'entropie $\int_{\mathcal{D}} \int_{\mathcal{B}(0, \sqrt{b})} \ln \left(\frac{\psi}{\psi_\infty} \right) \psi$ converge exponentiellement vite vers 0. Par conséquent, ψ converge exponentiellement vite vers ψ_∞ en norme $L_x^2(L_X^1)$.

On obtient donc un résultat de convergence à vitesse exponentielle en supposant que l'état stationnaire n'est pas "trop agité", au sens où la partie symétrique du gradient de vitesse n'est pas trop grand.

1.4 Energie libre pour les modèles macroscopiques

Dans cette section, nous nous intéressons aux modèles macro-macro. L'objectif est d'analyser le comportement en temps long pour les modèles macro-macro en utilisant des idées développées sur les modèles micro-macro. C'est l'objet de la section 1.4.1. Dans la section 1.4.2, on utilise ensuite ces résultats pour analyser le comportement en temps long de schémas numériques pour les modèles macro-macro, en proposant un nouveau critère de stabilité.

Dans toute cette section, on suppose que

$$u = 0 \text{ sur } \partial\mathcal{D}.$$

Des généralisations sont possibles dans l'esprit de la section 1.3.4.

1.4.1 Estimées d'énergie libre

Nous avons vu dans la section 1.3.3 que pour analyser le comportement en temps long des modèles micro-macro, il fallait utiliser l'énergie libre $\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \ln\left(\frac{\psi}{\psi_\infty}\right) \psi$ plutôt que l'énergie $\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \int_{\mathbb{R}^d} \Pi\psi$. Par ailleurs, nous avons remarqué que certains modèles macro-macro (comme le modèle Oldroyd-B par exemple) sont équivalents à des modèles micro-macro. Il apparaît alors naturel de regarder comment se traduisent les résultats obtenus sur le comportement en temps long des modèles micro-macro sur les modèles macro-macro. Cette section est basée sur l'article [TL17]. On renvoie également aux articles [65, 15, 79, 104] pour des considérations similaires.

Commençons par analyser le modèle Oldroyd-B, dont on sait qu'il est équivalent au modèle du *dumbbell* hookéen. Pour simplifier la présentation, on réécrit ce modèle en terme du tenseur appelé tenseur de conformation

$$\sigma = \frac{\text{We}}{\epsilon} \tau + \text{Id} \quad (31)$$

qui s'écrit dans la version micro-macro : $\sigma = \mathbb{E}(X_t \otimes X_t)$. Noter que σ est un tenseur symétrique défini positif. Le système (9) devient, avec ce nouveau jeu de variables (u, p, σ) :

$$\begin{cases} \text{Re}(\partial_t u + u \cdot \nabla u) = -\nabla p + (1 - \epsilon)\Delta u + \frac{\epsilon}{\text{We}} \text{div} \sigma, \\ \text{div} u = 0, \\ \partial_t \sigma + u \cdot \nabla \sigma = \nabla u \sigma + \sigma \nabla u^T - \frac{1}{\text{We}}(\sigma - \text{Id}). \end{cases} \quad (32)$$

L'équivalent de l'estimée d'énergie (21) est obtenu à partir du modèle macro-macro (32), d'une part en multipliant l'équation sur u par u et en intégrant sur le domaine \mathcal{D} (ce qui donne à nouveau (19)) :

$$\frac{\text{Re}}{2} \frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + (1 - \epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 = -\frac{\epsilon}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \sigma : \nabla u \quad (33)$$

et d'autre part en prenant la trace de l'équation sur σ et en intégrant sur le domaine \mathcal{D} :

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} \text{tr} \sigma = 2 \int_{\mathcal{D}} \sigma : \nabla u - \frac{1}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \text{tr} \sigma + \frac{1}{\text{We}} d|\mathcal{D}|, \quad (34)$$

où d est la dimension du domaine \mathcal{D} , et $|\mathcal{D}|$ sa mesure de Lebesgue. Par combinaison linéaire de (33) et (34), on obtient donc :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \text{tr} \sigma \right) + (1 - \epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \text{tr} \sigma = \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} d|\mathcal{D}|. \quad (35)$$

On vérifie que cette égalité est équivalente à (21) pour des *dumbbells* hookéens ($\Pi = \|X\|^2/2$). Elle présente donc les mêmes défauts que l'égalité (21) pour étudier le comportement en temps long, liés au terme positif dans le membre de droite de (35).

On cherche maintenant à écrire l'estimée d'énergie libre (28), dans le cas du modèle hookéen, en terme de la contrainte τ (ou plutôt du tenseur σ). Pour le modèle hookéen, les densités de probabilités ψ et ψ_∞ sont gaussiennes (et centrées), donc il semble naturel de pouvoir réexprimer (28) en terme de $\sigma = \mathbb{E}(X_t \otimes X_t)$ (qui caractérise complètement la loi de X_t). On vérifie que l'équivalent de l'estimée d'énergie libre (28) est obtenu par combinaison linéaire de (33), (34) et de l'égalité :

$$\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{D}} \text{tr} \ln \sigma = \frac{1}{\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \text{tr}(\sigma^{-1} - \text{Id}), \quad (36)$$

qui dérive de l'équation sur σ en la contractant par σ^{-1} , en intégrant sur \mathcal{D} , et en utilisant l'identité de Jacobi :

$$((\partial_t + u \cdot \nabla) \sigma) : \sigma^{-1} = (\partial_t + u \cdot \nabla) \text{tr} \ln \sigma. \quad (37)$$

En combinant (33)+ $\frac{\epsilon}{2\text{We}}$ (34)- $\frac{\epsilon}{2\text{We}}$ (36), on obtient :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \text{tr}(\sigma - \ln \sigma - \text{Id}) \right) + (1-\epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \text{tr}(\sigma + \sigma^{-1} - 2\text{Id}) = 0. \quad (38)$$

On vérifie que (38) est l'équivalent de (28). En particulier, en utilisant l'identité matricielle suivante : pour toute matrice M symétrique définie positive :

$$0 \leq \text{tr}(M - \ln M - \text{Id}) \leq \text{tr}(M + M^{-1} - 2\text{Id}),$$

et l'inégalité de Poincaré (29), on en déduit la convergence exponentielle en temps long vers l'équilibre $(u_\infty, \sigma_\infty) = (0, \text{Id})$.

Ce résultat obtenu sur le modèle Oldroyd-B peut être utilisé pour intuiter de bonnes énergies afin d'étudier le comportement en temps long d'autres systèmes macro-macro, qui ne sont pas équivalents à un modèle micro-macro de la forme (10). Ainsi pour le modèle FENE-P (cf. Remarque 2), on obtient

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} (-\ln(\det \sigma) - b \ln(1 - \text{tr}(\sigma)/b)) \right) + (1-\epsilon) \int_{\mathcal{D}} |\nabla u|^2 \\ + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \int_{\mathcal{D}} \left(\frac{\text{tr}(\sigma)}{(1 - \text{tr}(\sigma)/b)^2} - \frac{2d}{1 - \text{tr}(\sigma)/b} + \text{tr}(\sigma^{-1}) \right) = 0. \end{aligned}$$

En utilisant ensuite l'identité matricielle : pour toute matrice M symétrique définie positive de taille $d \times d$,

$$\begin{aligned} 0 \leq -\ln(\det(M)) - b \ln(1 - \text{tr}(M)/b) + (b+d) \ln \left(\frac{b}{b+d} \right) \\ \leq \left(\frac{\text{tr}(M)}{(1 - \text{tr}(M)/b)^2} - \frac{2d}{1 - \text{tr}(M)/b} + \text{tr}(M^{-1}) \right), \end{aligned}$$

et l'inégalité de Poincaré (29), on en déduit que l'énergie libre

$$\frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} (-\ln(\det \sigma) - b \ln(1 - \text{tr}(\sigma)/b))$$

décroît exponentiellement vite vers 0.

1.4.2 Schémas numériques dissipatifs pour l'énergie libre

Nous terminons cette section par une étude du comportement en temps long de certains schémas numériques pour les modèles macro-macro. Cette section est basée sur l'article [TL36].

La question est la suivante : quels sont les ingrédients nécessaires pour qu'un schéma numérique pour le modèle Oldroyd-B (32) ait des propriétés dissipatives en énergie libre semblables au problème continu (cf. (38)) ?

Avant de répondre à cette question, rappelons qu'il est courant d'utiliser des schémas numériques sur le problème dépendant du temps pour calculer des états stationnaires, d'où l'importance de s'assurer de la stabilité des schémas en temps long. Par ailleurs, on a rappelé dans la section 1.2.2 qu'on observe en pratique des difficultés pour faire converger les schémas numériques, notamment quand le nombre de Weissenberg est grand. Ces difficultés sont peut-être liées au modèle lui-même (singularité des solutions pour certaines géométries, explosion en temps fini de la solution continue, par exemple). Ainsi, pour le modèle Oldroyd-B, il semble que les résultats obtenus sont parfois aberrants du fait du modèle lui-même (cf. [84, 98, 10]), ceci pouvant être relié au fait que pour le modèle du *dumbell* hookéen (qui est un modèle micro-macro équivalent) le vecteur X_t peut s'étendre indéfiniment. Dans d'autres cas, la situation n'est pas aussi claire. Ainsi, un schéma numérique proposé récemment dans [44, 54] et basé sur une reformulation de l'équation (38) en terme du logarithme du tenseur σ semble donner des résultats pour des nombres de Weissenberg supérieurs à la limite de stabilité habituelle pour les schémas usuels. Dans ce contexte, un des objectifs de notre étude est de proposer un nouveau critère de stabilité pour les schémas numériques, pour aider à distinguer les difficultés provenant du schéma lui-même, des instabilités intrinsèquement contenues dans le modèle.

On introduit la formulation variationnelle à la base d'une discrétisation par éléments finis pour le modèle Oldroyd-B (32) : trouver (u, p, σ) tel que pour tout (v, q, ϕ) ,

$$\begin{aligned} \int_{\mathcal{D}} \left(\operatorname{Re} (\partial_t u + u \cdot \nabla u) \cdot v + (1 - \epsilon) \nabla u : \nabla v - p \operatorname{div} v + \frac{\epsilon}{\operatorname{We}} \sigma : \nabla v + q \operatorname{div} u \right. \\ \left. + (\partial_t \sigma + u \cdot \nabla \sigma) : \phi - (\nabla u \sigma + \sigma \nabla u^T) : \phi + \frac{1}{\operatorname{We}} (\sigma - \operatorname{Id}) : \phi \right) = 0. \end{aligned} \quad (39)$$

Pour obtenir l'estimée d'énergie libre (38), il faut prendre comme fonction test dans cette équation $(v, q, \phi) = (u, p, \frac{\epsilon}{2\operatorname{We}} (\operatorname{Id} - \sigma^{-1}))$.

Un schéma numérique qui permet de reproduire (38) au niveau discret est le suivant : discrétisation par éléments finis de Scott-Vogélius $((\mathbb{P}_d)^2 \times \mathbb{P}_{d-1, \text{disc}}$ en dimension $d = 2$ ou $d = 3$) du couple vitesse pression, par éléments finis \mathbb{P}_0 de la contrainte σ , et discrétisation des termes d'advection par la méthode des caractéristiques ou une méthode de Galerkin discontinu. A titre d'exemple, dans ce dernier cas, la formulation variationnelle s'écrit : trouver $(u_h^{n+1}, p_h^{n+1}, \sigma_h^{n+1}) \in (\mathbb{P}_d)^2 \times \mathbb{P}_{d-1, \text{disc}} \times (\mathbb{P}_0)^3$ tel que pour tout $(v, q, \phi) \in (\mathbb{P}_d)^2 \times$

$\mathbb{P}_{d-1, disc} \times (\mathbb{P}_0)^3 :$

$$\begin{aligned}
& \sum_{k=1}^{N_K} \int_{K_k} \left(\text{Re} \left(\frac{u_h^{n+1} - u_h^n}{\delta t} + u_h^n \cdot \nabla u_h^{n+1} \right) \cdot v - p_h^{n+1} \text{div} v + q \text{div} u_h^{n+1} \right. \\
& \quad + (1 - \epsilon) \nabla u_h^{n+1} : \nabla v + \frac{\epsilon}{\text{We}} \sigma_h^{n+1} : \nabla v + \frac{1}{\text{We}} (\sigma_h^{n+1} - \text{Id}) : \phi \\
& \quad \left. + \left(\frac{\sigma_h^{n+1} - \sigma_h^n}{\delta t} \right) : \phi - (\nabla u_h^{n+1} \sigma_h^{n+1} + \sigma_h^{n+1} (\nabla u_h^{n+1})^T) : \phi \right) \\
& \quad + \sum_{j=1}^{N_E} \int_{E_j} |u_h^n \cdot n| [\![\sigma_h^{n+1}]\!] : \phi^+ = 0,
\end{aligned} \tag{40}$$

où $(K_k)_{1 \leq k \leq N_K}$ désigne les éléments du maillage, $(E_j)_{1 \leq j \leq N_E}$ les arêtes intérieures du maillage, n la normale à l'arête, ϕ^+ la valeur aval de ϕ (pour le champ de vitesse u_h^n) et $[\![\sigma_h^{n+1}]\!] = (\sigma_h^{n+1})^+ - (\sigma_h^{n+1})^-$ le saut de σ_h^{n+1} au travers de l'arête. On montre alors le résultat de stabilité sous condition CFL suivant :

Théorème 11 *Pour un maillage donné, il existe une constante $c_0 > 0$ telle que pour tout $\delta t < c_0$, il existe une unique solution au problème (40), avec σ_h^{n+1} symétrique définie positive. De plus, cette solution satisfait l'estimée d'énergie libre :*

$$\begin{aligned}
& F_h^{n+1} - F_h^n + \int_{\mathcal{D}} \frac{\text{Re}}{2} |u_h^{n+1} - u_h^n|^2 \\
& + \delta t \int_{\mathcal{D}} \left((1 - \epsilon) |\nabla u_h^{n+1}|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}^2} \text{tr} (\sigma_h^{n+1} + (\sigma_h^{n+1})^{-1} - 2\text{Id}) \right) \leq 0
\end{aligned} \tag{41}$$

où

$$F_h^n = \frac{\text{Re}}{2} \int_{\mathcal{D}} |u_h^n|^2 + \frac{\epsilon}{2\text{We}} \int_{\mathcal{D}} \text{tr}(\sigma_h^n - \ln \sigma_h^n - \text{Id}).$$

On renvoie à l'article [TL36] pour un exposé plus détaillé des schémas numériques dissipatifs en énergie libre. En résumé, nous montrons que :

- (i) Le schéma de discrétisation des termes d'advection joue un rôle crucial dans les preuves. Nous analysons en particulier une discrétisation par méthode des caractéristiques, et une discrétisation par une méthode de Galerkin discontinu.
- (ii) La discrétisation en espace de la contrainte doit contenir l'espace \mathbb{P}_0 . Ceci est relié au fait que \mathbb{P}_0 est stable pour l'application $\sigma \mapsto \frac{\epsilon}{2\text{We}}(\text{Id} - \sigma^{-1})$ et qu'on a besoin de prendre $\phi = \frac{\epsilon}{2\text{We}}(\text{Id} - \sigma^{-1})$ comme fonction test.
- (iii) Il est possible d'obtenir un schéma dissipatif pour l'énergie libre quelque soit la valeur du pas du temps, en utilisant la formulation en logarithme du tenseur de conformation récemment introduite dans [44, 54] (alors qu'une condition CFL est nécessaire pour les schémas basés sur la formulation en σ , cf. théorème 11). De plus, toute solution du problème en terme du logarithme du tenseur de conformation satisfait une inégalité d'énergie libre (ce qui n'est pas le cas pour la formulation en terme de σ). Ceci est peut-être relié au fait que ces nouveaux schémas semblent plus stables.

2 Simulation moléculaire

Cette section est consacrée à l'étude de modèles à l'échelle moléculaire. Dans la section 2.1 on analyse des méthodes probabilistes pour calculer l'énergie fondamentale d'un système moléculaire. La section 2.2 sur le thème de la dynamique moléculaire discute des modèles à une échelle supérieure.

2.1 Méthodes Quantum Monte Carlo

Le terme Quantum Monte Carlo désigne un ensemble de méthodes numériques probabilistes pour calculer l'énergie fondamentale d'un système moléculaire. Le problème est le suivant. On suppose données les positions de M noyaux (approximation de Born-Oppenheimer), et l'objectif est de calculer la structure électronique, c'est-à-dire la fonction d'onde associée à N électrons autour des noyaux. On note dans la suite $(\bar{x}_1, \dots, \bar{x}_M)$ les positions des noyaux et (z_1, \dots, z_M) leurs charges. Mathématiquement, il s'agit de calculer la plus petite valeur propre (l'énergie fondamentale) d'un opérateur auto-adjoint H de domaine $D(H)$ défini sur un Hilbert \mathcal{H} :

$$E_0 = \inf \{ \langle \psi, H\psi \rangle, \psi \in D(H), \|\psi\| = 1 \}. \quad (42)$$

On appelle état fondamental une fonction propre (notée ψ_0 dans la suite) associée à la plus petite valeur propre. En négligeant les variables de spins, l'espace de Hilbert considéré est l'espace des fonctions de carré intégrable sur $(\mathbb{R}^3)^N$ antisymétrique par rapport à la position des électrons (la contrainte d'antisymétrie est liée au caractère fermionique des électrons) :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e = \bigwedge_{i=1}^N L^2(\mathbb{R}^3),$$

l'opérateur s'écrit

$$H = -\frac{1}{2}\Delta + V, \text{ avec } D(H) = \{u \in \mathcal{H}_e, Hu \in \mathcal{H}_e\}$$

avec un potentiel :

$$V(x) = \sum_{i=1}^N V_1(x_i) + \sum_{1 \leq i < j \leq N} V_2(x_i - x_j),$$

où

$$V_1(x) = -\sum_{k=1}^M \frac{z_k}{|x - \bar{x}_k|} \text{ et } V_2(x) = \frac{1}{|x|}.$$

Résoudre le problème (42) est un problème difficile étant donné la précision requise sur le calcul de E_0 et le fait que c'est un problème en très grande dimension, avec une contrainte d'antisymétrie difficile à imposer. Beaucoup de méthodes numériques ont été proposées : des méthodes déterministes basées sur des approximations variationnelles (Hartree-Fock) ou sur la théorie de la fonctionnelle de densité (Kohn-Sham, Thomas-Fermi), et des méthodes stochastiques (Quantum Monte Carlo). On renvoie à [28] pour un exposé complet.

2.1.1 Variational Monte Carlo

L'objectif de la méthode Variational Monte Carlo est de calculer des quantités

$$\frac{\int_{\mathbb{R}^{3N}} (O\psi)(R) \psi^*(R) dR}{\int_{\mathbb{R}^{3N}} |\psi|^2(R) dR},$$

où ψ est ici une fonction d'onde donnée. L'opérateur O est associé à une quantité physique, par exemple $O = H$ pour l'énergie. Dans le cadre du problème (42), cette méthode fait typiquement partie d'une boucle d'optimisation sur les paramètres d'une fonction d'onde ψ , que l'on cherche à ajuster au mieux pour minimiser la quantité $\langle \psi, H\psi \rangle$.

On peut réécrire le problème sous la forme du calcul d'une moyenne par rapport à une mesure de probabilité :

$$\frac{\int_{\mathbb{R}^{3N}} O_L(R) |\psi|^2(R) dR}{\int_{\mathbb{R}^{3N}} |\psi|^2(R) dR},$$

où

$$O_L = \frac{O\psi}{\psi}.$$

Dans le cas $O = H$, $O_L = E_L$ est appelé l'énergie locale.

Le problème numérique est maintenant d'échantillonner la mesure de probabilité $Z^{-1} |\psi|^2(R) dR$ (où $Z = \int_{\mathbb{R}^{3N}} |\psi|^2(R) dR$). Les algorithmes classiques (du type Markov Chain Monte Carlo) utilisent la dynamique (appelée *biased random-walk* (BRW) dans ce contexte) :

$$dR(t) = \nabla \ln |\psi|(R(t)) dt + dW(t). \quad (43)$$

En effet, sous de bonnes hypothèses, cette dynamique est ergodique pour la mesure $Z^{-1} |\psi|^2(R) dR$. On utilise typiquement un schéma d'Euler pour discrétiser l'équation différentielle stochastique et un pas de Metropolis Hasting pour corriger l'erreur due à la discrétisation en temps.

Nous avons proposé dans [TL13] d'utiliser une dynamique de Langevin plutôt que la dynamique (43), puisqu'il semble que cette dynamique a de meilleures propriétés d'ergodicité (cf. [24]). La dynamique de Langevin s'écrit, pour un système de N particules de masse m évoluant dans un potentiel V :

$$\begin{cases} dR(t) &= m^{-1} P(t) dt, \\ dP(t) &= -\nabla V(R(t)) dt - \gamma m^{-1} P(t) dt + \sigma dW(t). \end{cases} \quad (44)$$

En prenant $\sigma^2 = \frac{2\gamma}{\beta}$, la dynamique est ergodique pour la mesure

$$d\Pi(R, P) = Z^{-1} \exp \left(-\beta \left(V(R) + \frac{|P|^2}{2m} \right) \right) dR dP.$$

Dans la suite, on choisit donc $\beta = 1$ et $V = -\ln |\psi|^2$, de telle sorte que la marginale selon R du couple $(R(t), P(t))$ échantillonne la mesure $Z^{-1} |\psi|^2(R) dR$.

On utilise une discrétisation en temps particulière permettant d'utiliser un pas de Metropolis-Hasting pour corriger l'erreur due à la discrétisation en temps. Sur plusieurs tests numériques, on observe que la dynamique de Langevin donne de meilleurs résultats que la dynamique (43). En effet, la barre d'erreur est plus petite, et n'est pas aussi sensible aux paramètres numériques que pour d'autres méthodes.

2.1.2 Diffusion Monte Carlo : la *fixed node approximation*

L'objectif de la méthode Diffusion Monte Carlo (DMC) est de calculer directement E_0 (cf. (42)) par une méthode probabiliste. Le principe consiste à introduire un problème dépendant du temps pour lequel E_0 est obtenue dans la limite d'un temps infini.

Plus précisément, soit $\phi(t) := e^{-tH} \psi_I$ la solution (de Hille-Yosida) du problème

$$\begin{cases} \partial_t \phi = -H\phi, \\ \phi(t=0) = \psi_I, \end{cases} \quad (45)$$

où $\psi_I \in \mathcal{H}_e$, $\|\psi_I\| = 1$ et $(\psi_I, \psi_0) \neq 0$. En utilisant une décomposition spectrale de H (et sous de bonnes hypothèses sur le potentiel V), on vérifie que :

$$\phi(t) \underset{t \rightarrow \infty}{=} e^{-E_0 t} (\psi_I, \psi_0) \psi_0 + O(e^{-(E_0 + \gamma)t}) \text{ et } H\phi(t) \underset{t \rightarrow \infty}{=} E_0 e^{-E_0 t} (\psi_I, \psi_0) \psi_0 + O(e^{-(E_0 + \gamma)t}),$$

et donc

$$E(t) = \frac{\langle H\psi_I, \phi(t) \rangle}{(\psi_I, \phi(t))} \underset{t \rightarrow \infty}{=} E_0 + O(e^{-\gamma t}), \quad (46)$$

où $\gamma > 0$ est le trou spectral de H . L'idée est d'utiliser une représentation probabiliste de ϕ afin de calculer E_0 par la formule (46). La représentation naturelle

$$\phi(t, x) = \mathbb{E} \left(\psi_I(x + W_t) \exp \left(- \int_0^t V(x + W_s) ds \right) \right)$$

où W_t est un Brownien de dimension $3N$ n'est pas utilisable en pratique car la variance de $\left(\psi_I(x + W_t) \exp \left(- \int_0^t V(x + W_s) ds \right) \right)$ augmente avec le temps. Il faut donc avoir recourt à une méthode de réduction de variance. La méthode DMC utilise une réduction de variance par fonction d'importance, la fonction d'importance étant une fonction d'onde ψ_I (qui est aussi la condition initiale dans (45)) qu'on essaie en pratique de prendre aussi proche que possible de l'état fondamental ψ_0 de H (ψ_I est typiquement obtenue par une des méthodes déterministes qu'on a évoquées dans l'introduction de la section 2.1).

Soit $f_1(t, x) = \psi_I(x)\phi(t, x)$. Alors $E(t) = \frac{\int E_L f_1 dx}{\int f_1 dx}$ et f_1 satisfait (au sens des distributions) :

$$\begin{cases} \partial_t f = \frac{1}{2} \Delta f - \text{div}(bf) - E_L f, \\ f(t=0) = \psi_I^2, \end{cases} \quad (47)$$

où $b = \nabla \ln(|\psi_I|)$ et $E_L = \frac{H\psi_I}{\psi_I}$. Pour construire une représentation probabiliste de f_1 , on introduit le processus stochastique X_t^x tel que $X_0^x = x$ et qui satisfait l'équation différentielle stochastique :

$$dX_t^x = b(X_t^x) dt + dW_t. \quad (48)$$

Pour tout $t \geq 0$, on définit alors $f_2(t, \cdot)$ par la formule : $\forall \phi : \mathbb{R}^{3N} \rightarrow \mathbb{R}$,

$$\int \phi(x) f_2(t, x) dx = \int \mathbb{E} \left(\phi(X_t^x) \exp \left(- \int_0^t E_L(X_s^x) ds \right) \right) \psi_I^2(x) dx.$$

Par des considérations standards (formule de Feynman-Kac) on vérifie que f_2 est (comme f_1) une solution de (47) (au sens des distributions). Au vu de (46), on introduit donc la formule suivante pour calculer E_0 :

$$E^{\text{DMC}}(t) = \frac{\int E_L f_2 dx}{\int f_2 dx},$$

et

$$E_0^{\text{DMC}} := \lim_{t \rightarrow \infty} E^{\text{DMC}}(t).$$

En terme du processus X_t , on a

$$E^{\text{DMC}}(t) = \frac{\mathbb{E}_{\psi_I^2(x)dx} \left(E_L(X_t) \exp \left(- \int_0^t E_L(X_s) ds \right) \right)}{\mathbb{E}_{\psi_I^2(x)dx} \left(\exp \left(- \int_0^t E_L(X_s) ds \right) \right)}, \quad (49)$$

où $\mathbb{E}_{\psi_I^2(x)dx}$ désigne une espérance avec $X_0 \sim \psi_I^2(x)dx$ (et X_t qui satisfait (48)).

Le problème avec cette méthode est que, en général, $f_2 \neq f_1$, $E^{\text{DMC}} \neq E$, et $E_0^{\text{DMC}} \neq E_0$. Ceci est dû au fait que bien que f_2 et f_1 soient deux fonctions solutions de (47) (au sens des distributions), elles sont en général différentes. En effet, sauf dans le cas particulier où la fonction d'importance ψ_I a les mêmes noeuds (où les noeuds de ψ_I désigne l'ensemble $\psi_I^{-1}(0)$) que l'état fondamental de H , f_2/ψ_I est nul sur la surface nodale $\psi_I^{-1}(0)$, ce qui n'est pas le cas de $f_1/\psi_I = \phi$. La différence $E_0^{\text{DMC}} - E_0 \geq 0$ s'appelle la *fixed node approximation*. Cette erreur est connue des physiciens [25]. Dans l'article [TL10], nous prouvons rigoureusement ce résultat, et nous montrons que

$$E_0^{\text{DMC}} = \inf \left\{ \frac{1}{2} \int |\nabla \psi|^2 + \int V \psi^2, \psi \in D(q_H), \|\psi\| = 1, \psi = 0 \text{ sur } \psi_I^{-1}(0) \right\},$$

alors qu'on rappelle que E_0 est défini par (cf. (42)) :

$$E_0 = \inf \left\{ \frac{1}{2} \int |\nabla \psi|^2 + \int V \psi^2, \psi \in D(q_H), \|\psi\| = 1 \right\}.$$

Ici, $D(q_H)$ désigne le domaine de la forme quadratique associée à l'opérateur H .

Le théorème précis est le suivant :

Théorème 12 *On suppose que*

- (H1) $\psi_I \in D(H) \cap C^2(\mathbb{R}^{3N})$, $\|\psi_I\|_2 = 1$, $|\psi_I(y)| \leq ce^{-c|y|}$,
- (H2) $U_I = \mathbb{R}^{3N} \setminus \psi_I^{-1}(0)$ a un nombre fini de composantes connexes,
- (H3) $\exists \alpha > 0$, $\forall x \in \mathbb{R}^{3N}$, $|\psi_I(x)| \leq \alpha \Rightarrow \Delta(\psi_I^2)(x) \geq 0$,
- (H4) $\inf E_L > -\infty$,
- (H5) H est minoré et $\langle H\psi_I, \psi_I \rangle < \inf \sigma_{\text{ess}}(H)$.

Ces hypothèses sont vérifiées par les fonctions d'importance ψ_I utilisées en pratique. Alors, dans la limite $t \rightarrow +\infty$, $E^{\text{DMC}}(t)$ converge à vitesse exponentielle vers

$$E_0^{\text{DMC}} = \inf \{ \langle \psi, H\psi \rangle : \psi \in D(H), \|\psi\|_2 = 1, \psi_I^{-1}(0) \subset \psi^{-1}(0) \}.$$

De plus, $E_0^{\text{DMC}} \geq E_0$ avec égalité si et seulement si $\psi_I^{-1}(0) \subset \psi_0^{-1}(0)$ où ψ_0 est l'état fondamental de H .

La preuve consiste essentiellement à démontrer que $f_2(t, x) = \psi_I^2(x) \mathbb{E} \left(\exp \left(- \int_0^t E_L(X_s^x) ds \right) \right)$, et à ensuite vérifier que la fonction $\chi = f_2/\psi_I$ est telle que pour toute composante connexe \mathcal{C} de $\mathbb{R}^{3N} \setminus \psi_I^{-1}(0)$, $v = \chi|_{\mathcal{C}}$ est l'unique solution régulière du problème

$$\begin{cases} \frac{\partial v}{\partial t} = \frac{1}{2} \Delta v - Vv & \text{dans } \mathcal{D}'([0, +\infty[\times \mathcal{C}), \\ v(0, \cdot) = \psi_I|_{\mathcal{C}}, \\ v(t, x) = 0 \text{ pour } x \in \partial \mathcal{C}. \end{cases}$$

Noter que généralement $\phi = f_1/\psi_I \neq 0$ sur $\partial \mathcal{C}$. Une étape important de la preuve consiste à analyser l'équation différentielle stochastique (48), dont le terme de drift b tend vers l'infini sur les surfaces nodales de ψ_I . On montre que (48) admet une unique solution qui ne franchit pas les surfaces nodales de ψ_I .

2.1.3 Diffusion Monte Carlo : discrétisation

En pratique, on calcule $E^{\text{DMC}}(t)$ (défini par (49)) en utilisant un système de particules (appelés marcheurs dans ce contexte) et une moyenne empirique. L'algorithme pour faire évoluer la position du i -ème marcheur \tilde{X}_t^i est basé sur les ingrédients suivants (cf. [100, 99, 8]) :

- une discrétisation en temps de l'équation différentielle stochastique $dX_t^i = b(X_t^i)dt + dW_t^i$, typiquement par un schéma d'Euler :

$$\bar{X}_{t+\delta t}^i = \bar{X}_t^i + b(\bar{X}_t^i)\delta t + W_{t+\delta t}^i - W_t^i, \quad (50)$$

- une phase de réjection des positions obtenues après un pas du schéma d'Euler jusqu'à ce que $\psi_I(\bar{X}_{t+\delta t}^i)\psi_I(\bar{X}_t^i) > 0$ (pour éviter que la particule i ne traverse la surface nodale de ψ_I entre t et $t + \delta t$).
 - Une phase de Metropolis-Hastings pour s'assurer que $\bar{X}_{t+\delta t}^i$ est distribué selon $\psi_I^2(x)dx$.
- De plus, pour contrôler la variance, les particules avec un poids exponentiel élevé sont dupliquées, et les particules avec un poids exponentiel faible sont tuées (cf. [35] pour une présentation générale et une analyse mathématique de ce type de méthodes).

Voici un algorithme DMC simplifié (sans phase d'acceptation / réjection), avec un nombre fixé de marcheurs (cf. [8]). On note δt le pas de temps de discrétisation de l'équation différentielle stochastique, et on suppose que tous les κ pas de temps, on redistribue les particules selon leur poids. On note $\Delta t = \kappa \delta t$, ν le nombre total de pas de temps de taille Δt et $T = \nu \Delta t$ le temps final. L'algorithme est le suivant :

- **Initialisation** d'un ensemble N de marcheurs $(X_{0\Delta t}^j)_{1 \leq j \leq N}$ i.i.d. selon la mesure $|\psi_I|^2(x) dx$.

- **Itérations en temps** : soit $(X_{n\Delta t}^j)_{1 \leq j \leq N}$ les positions des particules au temps $n\Delta t$, pour $n \in \{0, \dots, \nu - 1\}$. Les positions des particules au temps $(n+1)\Delta t$ sont obtenues en deux temps :

1. **Déplacements des marcheurs** : pour $1 \leq j \leq N$, les positions $(X_{n\Delta t+\delta t}^j, \dots, X_{n\Delta t+\kappa\delta t}^j)$ sur l'intervalle de temps $(n\Delta t, (n+1)\Delta t)$ sont mises à jour, typiquement par un schéma d'Euler de pas de temps δt sur l'équation différentielle stochastique (48) (cf. (50)). Cette phase est aussi appelée phase de mutation.
2. **Reconfiguration stochastique** : Les nouvelles positions $(X_{(n+1)\Delta t}^j)_{1 \leq j \leq N}$ sont ensuite obtenues par échantillonnage de la mesure

$$\frac{\sum_{j=1}^N \exp\left(-\delta t \sum_{k=1}^{\kappa} E_L(X_{n\Delta t+k\delta t}^j)\right) \delta_{X_{n\Delta t+\kappa\delta t}^j}}{\sum_{j=1}^N \exp\left(-\delta t \sum_{k=1}^{\kappa} E_L(X_{n\Delta t+k\delta t}^j)\right)}. \quad (51)$$

Autrement dit, les nouvelles positions $(X_{(n+1)\Delta t}^j)_{1 \leq j \leq N}$ sont choisies aléatoirement parmi les positions à la fin du pas de temps $(X_{n\Delta t+\kappa\delta t}^j)_{1 \leq j \leq N}$, en mettant sur chacune d'entre elle un poids $\exp\left(-\delta t \sum_{k=1}^{\kappa} E_L(X_{n\Delta t+k\delta t}^j)\right)$ (qui correspond au facteur exponentiel dans (49)). Cette phase est aussi appelée phase de sélection.

Une approximation de $E^{\text{DMC}}(t_n)$ est alors donnée par :

$$E^{\text{DMC}}(t_n) \simeq \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N E_L(X_{n\Delta t}^j). \quad (52)$$

L'approximation de E_0 par $\frac{1}{N} \sum_{j=1}^N E_L(X_{\nu\Delta t}^j)$ inclut quatre types d'erreur :

1. l'erreur due à la *fixed node approximation* $|E_0 - E_0^{\text{DMC}}|$,

2. l'erreur liée au fait que $T = \nu\Delta t < \infty$ (alors que E_0^{DMC} est théoriquement obtenu dans la limite $T \rightarrow \infty$),
3. l'erreur due à la discrétisation en temps,
4. l'erreur introduite par le nombre fini de particules (approximation de (49) par une moyenne empirique, cf. (52)).

Pour les erreurs de type 1 et 2, on renvoie à la section précédente. Dans [TL14], nous analysons sur un cas très simplifié uni-dimensionnel la convergence du système de particules dans la limite d'un nombre infini de particules et d'un pas temps δt qui tend vers 0 (c'est-à-dire les erreurs de type 3 et 4). Plus précisément, nous montrons que :

$$\mathbb{E} \left| E^{\text{DMC}}(T) - \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N E_L \left(X_{\nu\kappa\delta t}^j \right) \right| \leq C(T) \delta t + \frac{C(T, \nu)}{\sqrt{N}}, \quad (53)$$

où $C(T)$ (resp. $C(T, \nu)$) est une constante qui ne dépend que de T (resp. de T et $\nu = T/\Delta t$).

Nous analysons également numériquement l'influence sur la variance des résultats de la méthode de rééchantillonnage dans la phase de reconfiguration stochastique, et proposons un critère pour choisir la période κ entre deux reconfigurations de manière optimale (vis-à-vis de la variance).

2.2 Dynamique moléculaire et calcul d'énergie libre

Nous abordons dans cette section des travaux portant principalement sur le calcul d'énergie libre en dynamique moléculaire.

Le contexte est le suivant. On considère un système moléculaire de N particules, de position $(x_1, \dots, x_N) = x \in \mathbb{R}^{3N}$ et qui interagissent au travers d'un potentiel $V(x_1, \dots, x_N)$. On note $n = 3N$ la dimension totale. Dans l'ensemble canonique NVT, les positions des particules se répartissent suivant la mesure de probabilité de Boltzmann-Gibbs :

$$\mu(dx) = Z^{-1} \exp(-\beta V(x)) dx, \quad (54)$$

où $Z = \int \exp(-\beta V(x)) dx$ est la fonction de partition et $\beta = (kT)^{-1}$, avec k la constante de Boltzmann et T la température. Un des objectifs essentiels en dynamique moléculaire est de calculer des moyennes canoniques de la forme

$$\int \phi(x) \mu(dx) \quad (55)$$

pour certaines fonctionnelles ϕ , afin d'obtenir des "quantités macroscopiques" comme la vraisemblance d'une conformation moléculaire, ou l'avancement d'une réaction chimique. Les domaines d'application concernent typiquement la biologie moléculaire (calcul de repliement de protéine, simulation de mécanismes moléculaires d'intérêt biologique) et la chimie computationnelle (calcul des processus réactionnels : adsorption sur un substrat, états de transitions, etc...). On renvoie aux monographies [1, 27, 46, 64] pour une présentation générale.

Remarque 13 *Pour faire le lien avec la section précédente, les positions (x_1, \dots, x_N) sont typiquement les positions des noyaux d'un système moléculaire et, dans l'idéal, on aimerait que $V(x_1, \dots, x_N)$ soit l'énergie fondamentale associée à cette configuration des noyaux. En pratique, il serait extrêmement coûteux de réaliser pour chaque nouvelle position des noyaux un calcul de structure électronique, et on utilise donc en général des approximations*

pour le potentiel V , appelées champs de force. Typiquement, V est la somme de potentiels modélisant l'interaction entre deux particules, trois particules et quatre particules :

$$V = \sum_{i < j} V_1(x_i, x_j) + \sum_{i < j < k} V_2(x_i, x_j, x_k) + \sum_{i < j < k < l} V_3(x_i, x_j, x_k, x_l).$$

Par exemple, $V_1(x_i, x_j) = V_{LJ}(|x_i - x_j|)$ où $V_{LJ}(r) = 4\epsilon \left(\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right)$ est le potentiel de Lennard-Jones.

Le calcul de moyennes canoniques (55) est un problème en grande dimension (N est couramment de l'ordre de plusieurs centaines de milliers, jusqu'à plusieurs millions pour les applications en biologie) qui nécessite le recours à des méthodes de Monte Carlo, typiquement basées sur des chaînes de Markov (méthodes de type *Markov Chain Monte Carlo*, utilisées également en statistique par exemple).

Par exemple, pour échantillonner μ , on peut utiliser X_t solution de l'équation différentielle stochastique :

$$dX_t = -\nabla V(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} dW_t. \quad (56)$$

La dynamique (56) est appelée, dans ce contexte, dynamique de gradient ou dynamique de Langevin amortie (*overdamped Langevin*). Elle est à la base de toutes les méthodes que nous considérons dans cette section. On rappelle que sous de bonnes hypothèses sur le potentiel V , on a la propriété d'ergodicité : pour μ -presque tout X_0 ,

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T \phi(X_t) dt = \int \phi(x) \mu(dx). \quad (57)$$

Remarque 14 La dynamique stochastique la plus utilisée par les physiciens est plutôt la dynamique de Langevin :

$$\begin{cases} dX_t = M^{-1} P_t dt, \\ dP_t = -\nabla V(X_t) dt - \gamma M^{-1} P_t dt + \sqrt{2\gamma\beta^{-1}} dW_t, \end{cases} \quad (58)$$

où M est un tenseur de masse et γ un coefficient de friction. Dans la suite, on se restreint à la dynamique de Langevin amortie (56), qui est obtenue à partir de la dynamique de Langevin dans la limite $m \rightarrow 0$ ou $\gamma \rightarrow \infty$. La généralisation des résultats ci-dessous à la dynamique de Langevin n'est pas en général triviale car le générateur infinitésimal associé à cette dynamique n'est plus elliptique, ce qui rend l'analyse plus compliquée.

Ce qui rend en pratique la méthode de calcul (57) inopérante est la métastabilité du processus X_t . En effet, la convergence $T \rightarrow \infty$ est extrêmement longue à obtenir, du fait de puits dans le potentiel V dans lesquels le processus X_t reste piégé très longtemps. Pour donner une image intuitive on peut considérer le potentiel 2-dimensionnel représenté sur la Figure 2, pour lequel la première coordonnée du processus X_t^1 est une variable métastable (ou variable lente).

Bien sûr, résoudre ce problème dans toute sa généralité est une tâche impossible (aucune méthode numérique ne peut explorer l'ensemble des puits d'un potentiel V en grande dimension, séparés par des barrières arbitrairement grandes, en un temps de calcul raisonnable). Nous allons donc ajouter une hypothèse supplémentaire, spécifique au cadre de la simulation moléculaire. Nous supposons dans la suite que l'on connaît les variables lentes du système, sous la forme d'une application

$$\xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R} \text{ ou } \xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{T} \quad (59)$$

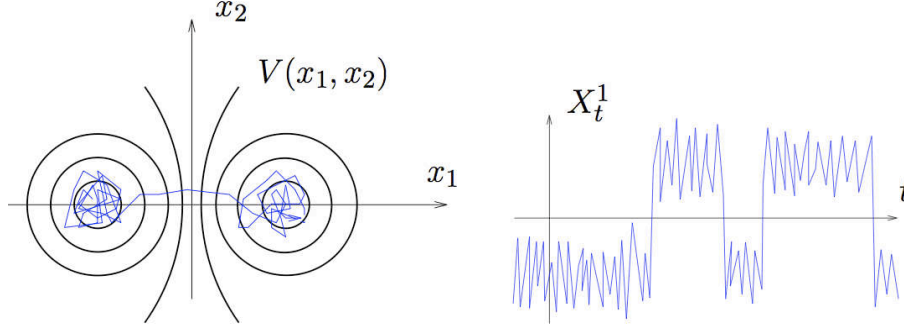


FIG. 2 – À gauche, les lignes de niveau d'un potentiel métastable, et à droite, une représentation schématique de l'évolution de la première coordonnée d'un processus stochastique évoluant selon la dynamique (56) dans ce potentiel.

appelée coordonnée de réaction, ou variable collective. On note $\mathbb{T} = \mathbb{R}/\mathbb{Z}$ le tore unidimensionnel. En pratique, on peut avoir $\xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}^p$ (ou $\xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{T}^p$) avec $p \ll n$, mais on suppose dans cette présentation $p = 1$ pour simplifier. L'ensemble des résultats sont généralisables au cas $p > 1$. Pour fixer les idées, sur l'exemple de la figure 2, la coordonnée de réaction serait $\xi : (x_1, x_2) \mapsto x_1$. En pratique, ξ est typiquement une distance signée entre deux (groupes de) particules (auquel cas ξ est à valeurs dans \mathbb{R}), par exemple pour indexer l'évolution d'une réaction de synthétisation d'un composé, ou un angle (auquel cas ξ est à valeurs dans \mathbb{T}), par exemple pour caractériser la conformation d'une molécule. La connaissance de ξ nécessite bien sûr une intuition sur le système considéré. La qualité des méthodes que nous présentons ci-dessous dépend crucialement du choix d'une bonne fonction ξ , et déterminer pour un système quelconque une bonne coordonnée de réaction reste un problème compliqué. Dans la suite, on suppose que ξ est une fonction régulière telle que $|\nabla \xi| > 0$.

À la coordonnée de réaction est associée un potentiel effectif, appelé énergie libre.

Définition 15 *L'image de la mesure μ par ξ est $Z^{-1} \exp(-\beta A(z)) dz$, où A est appelée l'énergie libre. On vérifie que*

$$A(z) = -\beta^{-1} \ln \left(\int_{\Sigma_z} \exp(-\beta V) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z} \right) = -\beta^{-1} \ln Z_{\Sigma_z}, \quad (60)$$

où $\Sigma_z = \{x, \xi(x) = z\}$ est une sous-variété (régulière) de \mathbb{R}^n , et σ_{Σ_z} est la mesure de Lebesgue sur Σ_z .

La formule (60) découle de la formule de la co-aire [2, 43], que l'on peut voir comme une généralisation de la formule de Fubini (intégration par tranches) : pour toute fonction régulière $\phi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$,

$$\int_{\mathbb{R}^n} \phi(x) |\nabla \xi|(x) dx = \int_{\mathbb{R}} \int_{\Sigma_z} \phi d\sigma_{\Sigma_z} dz. \quad (61)$$

La mesure $|\nabla \xi|^{-1}(x) \sigma_{\Sigma_z}(dx)$ est parfois notée $\delta_{\xi(x)-z}(dx)$ dans la littérature.

En utilisant la formule de la co-aire, on voit que l'on peut écrire une moyenne canonique sous la forme (c'est une formule de conditionnement) :

$$\int \phi d\mu = \int_{\mathbb{R}} \int_{\Sigma_z} \phi d\mu_{\Sigma_z} \exp(-\beta A(z)) dz \quad (62)$$

où la mesure de probabilité

$$d\mu_{\Sigma_z} = \frac{\exp(-\beta V)|\nabla\xi|^{-1}d\sigma_{\Sigma_z}}{Z_{\Sigma_z}} = \frac{\exp(-\beta V)|\nabla\xi|^{-1}d\sigma_{\Sigma_z}}{\exp(-\beta A(z))} \quad (63)$$

est la mesure canonique μ conditionnée à une valeur fixée de la coordonnée de réaction. Noter que $Z_{\Sigma_z} = \exp(-\beta A(z))$ est la fonction de partition associée à la mesure conditionnée μ_{Σ_z} .

On voit donc que le problème initial (calcul d'une moyenne canonique) est ramené aux problèmes suivants :

- (i) Calculer l'énergie libre A (à une constante additive près qui n'intervient plus après normalisation, cf. (62)–(63)) ;
- (ii) Échantillonner la mesure μ_{Σ_z} . Si ξ a été bien choisi, on peut espérer que cette tâche soit nettement plus simple que l'échantillonnage de la mesure μ (penser à nouveau au cas de la figure 2 pour lequel, dans les tranches Σ_z , le potentiel est convexe, donc sans métastabilité).

Dans plusieurs applications, la fonctionnelle ϕ d'intérêt est en fait une fonction de ξ , auquel cas le seul problème restant est le calcul de l'énergie libre (i). Par ailleurs, le calcul de l'énergie libre présente un intérêt en soi, car les physiciens utilisent le profil d'énergie libre pour guider leur intuition sur les mécanismes réactionnels (y compris sur des aspects dynamiques).

Remarque 16 *Il y a ici une question sous-jacente très importante pour la pratique : peut-on donner un sens dynamique à l'énergie libre A ? De manière plus précise, est-il possible d'écrire une dynamique effective sur la coordonnée de réaction $\xi(X_t)$ (où X_t satisfait la dynamique (56)) en fonction de A ? Cette question est l'objet d'un travail en cours [TL41].*

Dans la suite, on s'intéresse à trois grandes classes de méthodes pour le calcul de l'énergie libre A (problème (i)) : l'intégration thermodynamique (section 2.2.1), les méthodes hors équilibre (section 2.2.2), et les méthodes adaptatives (sections 2.2.3, 2.2.4 et 2.2.5). Pour une revue, on renvoie à [TL32] et au livre [27]. On discutera dans la section 2.2.1 l'échantillonnage d'une mesure sur une sous-variété (problème (ii)).

2.2.1 Intégration thermodynamique

L'intégration thermodynamique pour le calcul de l'énergie libre [60] est basée sur deux ingrédients.

Le premier ingrédient est que la dérivée de A par rapport à la coordonnée de réaction (appelée la force moyenne) peut être obtenue en échantillonnant la probabilité conditionnelle μ_{Σ_z} . En effet, en utilisant la formule de la co-aire, on montre que

$$\begin{aligned} A'(z) &= Z_{\Sigma_z}^{-1} \int_{\Sigma_z} \left(\frac{\nabla V \cdot \nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} - \beta^{-1} \operatorname{div} \left(\frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} \right) \right) \exp(-\beta V) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z} \\ &= Z_{\Sigma_z}^{-1} \int_{\Sigma_z} \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} \cdot (\nabla \tilde{V} + \beta^{-1} H) \exp(-\beta \tilde{V}) d\sigma_{\Sigma_z} \\ &= \int_{\Sigma_z} F d\mu_{\Sigma_z}, \end{aligned} \quad (64)$$

où

$$\tilde{V} = V + \beta^{-1} \ln |\nabla \xi|, \quad (65)$$

la force locale F est définie par

$$F = \frac{\nabla V \cdot \nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} - \beta^{-1} \operatorname{div} \left(\frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} \right) \quad (66)$$

et le vecteur courbure moyenne H est :

$$H = -\nabla \cdot \left(\frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|} \right) \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|}. \quad (67)$$

Le deuxième ingrédient est que la dynamique contrainte :

$$\begin{cases} dX_t = -\nabla \tilde{V}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} dW_t + \nabla \xi(X_t) d\Lambda_t, \\ d\Lambda_t \text{ tel que } \xi(X_t) = z, \end{cases} \quad (68)$$

admet pour mesure invariante (et, sous de bonnes hypothèses, est ergodique par rapport à) la probabilité conditionnelle $d\mu_{\Sigma_z} = Z_{\Sigma_z}^{-1} \exp(-\beta \tilde{V}) d\sigma_{\Sigma_z}$. Noter qu'il faut bien utiliser le potentiel modifié \tilde{V} (défini par (65)) et non pas le potentiel original V . Plus précisément, l'équation différentielle stochastique contrainte (68) s'écrit :

$$dX_t = P(X_t) \left(-\nabla \tilde{V}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} dW_t \right) + \beta^{-1} H(X_t) dt, \quad (69)$$

où l'opérateur de projection orthogonale $P(x)$ est :

$$P(x) = \text{Id} - n(x) \otimes n(x), \quad (70)$$

où $n(x) = \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|}(x)$ est un vecteur normal à la sous-variété $\Sigma_{\xi(x)}$ au point x . Cette dynamique peut aussi s'écrire en utilisant le produit de Stratonovitch :

$$dX_t = -P(X_t) \nabla \tilde{V}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} P(X_t) \circ dW_t. \quad (71)$$

La formulation (68) avec un multiplicateur de Lagrange $d\Lambda_t$ associé à la contrainte $\xi(X_t) = z$ présente l'avantage de suggérer des schémas de discrétisation (cf. le schéma (74) ci-dessous).

De plus, on vérifie que

$$d\Lambda_t = d\Lambda_t^m + d\Lambda_t^f, \quad (72)$$

avec $d\Lambda_t^m = -\sqrt{2\beta^{-1}} \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2}(X_t) \cdot dW_t$ et

$$d\Lambda_t^f = \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} \cdot \left(\nabla \tilde{V} + \beta^{-1} H \right) (X_t) dt = F(X_t) dt \quad (73)$$

si bien que

$$A'(z) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T d\Lambda_t = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T d\Lambda_t^f.$$

La valeur de la force moyenne en un point z et donc en pratique obtenue par une moyenne sur une trajectoire du multiplicateur de Lagrange $d\Lambda_t$ associé à la contrainte $\xi(x) = z$ pour la dynamique contrainte (68) (cf. l'équation (75) ci-dessous).

Le profil d'énergie libre est ensuite obtenu par une intégration en dimension 1 :

$$A(z) - A(0) = \int_0^z A'(z) dz \simeq \sum_{i=0}^K \omega_i A'(z_i),$$

où z_i désigne des points de Gauss d'une formule d'intégration, et ω_i les poids associés. Des deux problèmes (i) et (ii) mentionnés en introduction, on se ramène donc simplement au problème (ii) : l'échantillonnage d'une mesure sur une sous-variété. Remarquer que le fait que la partie à variation finie du processus Λ_t s'exprime en fonction de la force moyenne

locale F (cf. (73)) permet de calculer $A'(z)$ sans calculer les dérivées compliquées dans l'expression (66) définissant F .

Dans [TL18], nous démontrons rigoureusement l'ensemble de ces résultats, qui étaient pour la plupart connus des physiciens [77, 91, 41, 29]. Nous proposons également une méthode de réduction de variance pour le schéma numérique associé. Précisons cela. Un schéma de discrétisation naturel pour (68) est le suivant :

$$\begin{cases} X_{n+1} = X_n - \nabla \tilde{V}(X_n)\delta t + \sqrt{2\beta^{-1}}\Delta W_n + \lambda_n \nabla \xi(X_n), \\ \text{où } \lambda_n \in \mathbb{R} \text{ est tel que } \xi(X_{n+1}) = z, \end{cases} \quad (74)$$

où $\Delta W_n = W_{(n+1)\delta t} - W_{n\delta t}$ désigne un incrément brownien. Il s'agit d'un schéma de type prédicteur correcteur, où l'on fait d'abord un pas du schéma d'Euler sur l'équation différentielle stochastique non contrainte (56), puis un pas de projection sur la sous-variété Σ_z . On montre que :

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \lim_{\delta t \rightarrow 0} \frac{1}{T} \sum_{n=1}^{T/\delta t} \lambda_n = A'(z). \quad (75)$$

On peut réduire grandement la variance de l'estimateur $\frac{1}{T} \sum_{n=1}^{T/\delta t} \lambda_n$ en remarquant que, conformément à la formule (72), cet estimateur contient une partie fluctuante de moyenne nulle correspondant à la discrétisation de la martingale Λ_t^m . Une méthode de réduction de variance consiste alors à utiliser l'estimateur $\frac{1}{T} \sum_{n=1}^{T/\delta t} \frac{\lambda_n + \tilde{\lambda}_n}{2}$, où $\tilde{\lambda}_n$ est défini par (remarquer le changement de signe devant l'incrément brownien par rapport à (74)) :

$$\begin{cases} \tilde{X}_{n+1} = X_n - \nabla \tilde{V}(X_n)\delta t - \sqrt{2\beta^{-1}}\Delta W_n + \tilde{\lambda}_n \nabla \xi(X_n), \\ \text{où } \tilde{\lambda}_n \in \mathbb{R} \text{ est tel que } \xi(\tilde{X}_{n+1}) = z. \end{cases}$$

Remarque 17 *Il y a bien sûr plusieurs manières de projeter la dynamique (56) sur la sous-variété Σ_z , et on a choisi une méthode de projection qui se discrétise de manière très naturelle. Il est important de remarquer que la statistique (i.e. la mesure invariante) de la dynamique projetée dépend de la méthode de projection. Par exemple, une projection utilisant le potentiel de pénalisation $V_k(x, z) = V(x) + k(z - \xi(x))^2$ (dans la dynamique (56)) permet d'échantillonner la mesure invariante μ_{Σ_z} , dans la limite $k \rightarrow \infty$, sans modification du potentiel V en \tilde{V} . Dans le cas d'une équation différentielle ordinaire (sans mouvement brownien), les deux approches (projection "rigide" (69) et pénalisation) sont équivalentes. Ceci est relié à une discussion dans la littérature physique sur les différences statistiques entre l'utilisation d'une barre rigide et l'utilisation d'un ressort infiniment raide pour imposer une contrainte (cf. [101, 51]).*

Remarque 18 *On pourrait penser à utiliser un algorithme de projection différent dans l'algorithme (74). Par exemple, on pourrait considérer (noter le changement de $\nabla \xi(X_n)$ à $\nabla \xi(X_{n+1})$ par rapport à (74))*

$$\begin{cases} X_{n+1} = X_n - \nabla \tilde{V}(X_n)\delta t + \sqrt{2\beta^{-1}}\Delta W_n + \lambda_n \nabla \xi(X_{n+1}), \\ \text{où } \lambda_n \in \mathbb{R} \text{ est tel que } \xi(X_{n+1}) = z, \end{cases} \quad (76)$$

qui est l'équation d'Euler Lagrange associée à la discrétisation :

$$\begin{cases} \tilde{X}_{n+1} = X_n - \nabla \tilde{V}(X_n)\delta t + \sqrt{2\beta^{-1}}\Delta W_n, \\ X_{n+1} = \arg \min_{Y \in \Sigma_z} \|\tilde{X}_{n+1} - Y\|^2. \end{cases}$$

On montre dans [TL18, TL19] que cette méthode de discrétisation, de même que la discrétisation (74) sont consistantes (dans la limite $\delta t \rightarrow 0$) avec la dynamique projetée (68).

Ceci dit, nous montrons dans [TL19], qu'une discrétisation du type (76) n'est pas nécessairement consistante avec la dynamique projetée associée pour une équation différentielle stochastique générale (avec un terme de diffusion devant le mouvement brownien qui n'est pas une constante fois l'identité). Autrement dit, les opérations de projection de la dynamique et de discrétisation ne commutent pas en général. On renvoie à [TL19] pour plus de détails.

Nous terminons cette section en évoquant un résultat de l'article [TL22]. Une question naturelle concernant le schéma de discrétisation (74) est de savoir quelle est l'erreur induite par la discrétisation en temps sur la mesure invariante de la dynamique. Autrement dit, quel est l'écart entre la mesure μ_{Σ_z} invariante par la dynamique (68) et la mesure $\mu_{\Sigma_z}^{\delta t}$ invariante par la dynamique (74), en fonction de δt . Il s'agit donc d'étendre des résultats bien connus de vitesse de convergence faible pour la discrétisation par le schéma d'Euler des équations différentielles stochastiques [95, 94], à des équations différentielles stochastiques projetées. Dans [TL22], nous montrons, dans un cadre plus général, que l'erreur faible est d'ordre 1 : il existe une constante positive δt_0 telles que, pour tout pas de temps $\delta t < \delta t_0$, pour toute fonction régulière $g : \Sigma_z \rightarrow \mathbb{R}$, il existe $C > 0$ tel que

$$\left| \int_{\Sigma_z} g d\mu_{\Sigma_z}^{\delta t} - \int_{\Sigma_z} g d\mu_{\Sigma_z} \right| \leq C \delta t.$$

La preuve s'applique à une équation différentielle stochastique générale ergodique pour une mesure μ_{Σ} de support une sous-variété Σ de \mathbb{R}^n , et pour tout schéma numérique consistant tel que le processus discrétisé est ergodique par rapport à une mesure $\mu_{\Sigma}^{\delta t}$ portée par Σ . La démonstration repose sur l'utilisation d'un système de coordonnées orthogonales adapté à la sous-variété Σ . On renvoie à [TL22] pour des résultats détaillés appliqués à divers schémas numériques.

2.2.2 Méthodes hors équilibre

Les méthodes hors équilibre pour calculer l'énergie libre ont été introduites récemment [57]. Le principe est de forcer la coordonnée de réaction à bouger selon une évolution déterministe $z : [0, T] \mapsto \mathbb{R}$ prescrite *a priori* pour évaluer la différence d'énergie libre $(A(z(t)) - A(z(0)))_{0 \leq t \leq T}$. On parle de dynamique hors équilibre, car on force la coordonnée de réaction à avancer en temps (en imposant la contrainte $\xi(X_t) = z(t)$) à une vitesse bien supérieure à celle à laquelle elle évoluerait pour la dynamique de base (56). La question est alors la suivante : comment établir des relations entre des quantités thermodynamiques à l'équilibre (comme la différence d'énergie libre) et des quantités calculées hors équilibre ? Dans la littérature de physique, de tels liens ont été découverts par C. Jarzynski dans [57]. D'un point de vue mathématique, il s'agit de formules de Feynman-Kac. Détaillons cela.

Sur le modèle de (68), on introduit la dynamique hors équilibre suivante :

$$\begin{cases} dX_t = -\nabla \tilde{V}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} dW_t + \nabla \xi(X_t) d\Lambda_t, \\ d\Lambda_t \text{ tel que } \xi(X_t) = z(t). \end{cases} \quad (77)$$

Plus précisément, l'équation différentielle stochastique (77) s'écrit (comparer avec (71)) :

$$\begin{cases} dX_t = -P(X_t) \nabla \tilde{V}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} P(X_t) \circ dW_t + \nabla \xi(X_t) d\Lambda_t^{\text{ext}}, \\ d\Lambda_t^{\text{ext}} = \frac{z'(t)}{|\nabla \xi(X_t)|^2} dt, \end{cases} \quad (78)$$

où \circ désigne un produit de Stratonovitch. Comme dans le cas de la dynamique (68), on vérifie que

$$d\Lambda_t = d\Lambda_t^{\text{m}} + d\Lambda_t^{\text{f}} + d\Lambda_t^{\text{ext}},$$

avec $d\Lambda_t^m = -\sqrt{2\beta^{-1}} \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2}(X_t) \cdot dW_t$, $d\Lambda_t^f = F(X_t) dt$ et $d\Lambda_t^{\text{ext}}$ défini dans (78).

En utilisant une formule de Feynman-Kac, on montre dans [TL12] l'égalité suivante :

$$A(z(t)) - A(z(0)) = -\beta^{-1} \ln (\mathbb{E} (\exp(-\beta \mathcal{W}(t)))) ,$$

où $\mathcal{W}(t)$ est un poids (un travail ou une énergie) associé à la trajectoire $(X_s)_{0 \leq s \leq t}$:

$$\mathcal{W}(t) = \int_0^t F(X_s) z'(s) ds = \int_0^t z'(s) d\Lambda_s^f.$$

A partir de cette formule, nous proposons un estimateur de $A(z(t)) - A(z(0))$ de la forme :

$$A(z(t)) - A(z(0)) \simeq -\beta^{-1} \ln \left(\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \exp \left(-\beta \mathcal{W}_{T/\delta t}^m \right) \right), \quad (79)$$

où $(\mathcal{W}_n^m)_{0 \leq n \leq T/\delta t}$ est le poids d'une m -ième réplique d'une trajectoire (discrétisée) de (77) (et $1 \leq m \leq M$, M désignant le nombre total de répliques). Plus précisément, pour m fixé, $(\mathcal{W}_n^m)_{0 \leq n \leq T/\delta t}$ est défini par $\mathcal{W}_0^m = 0$ et, $\forall n \in \{0, \dots, T/\delta t - 1\}$

$$\mathcal{W}_{n+1}^m = \mathcal{W}_n^m + \frac{z(t_{n+1}) - z(t_n)}{t_{n+1} - t_n} \lambda_n^{f,m}$$

avec $t_n = n\delta t$,

$$\lambda_n^{f,m} = \lambda_n^m - \frac{z(t_{n+1}) - z(t_n)}{|\nabla \xi(X_n^m)|^2} + \sqrt{2\beta^{-1}} \frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2}(X_n^m) \cdot \Delta W_n^m,$$

et (sur le modèle du schéma de discrétisation (74))

$$\begin{cases} X_{n+1}^m = X_n^m - \nabla V(X_n^m) \delta t + \sqrt{2\beta^{-1}} \Delta W_n^m + \lambda_n^m \nabla \xi(X_n^m), \\ \text{où } \lambda_n^m \in \mathbb{R} \text{ est tel que } \xi(X_{n+1}^m) = z(t_{n+1}). \end{cases}$$

Dans ces équations, $\Delta W_n^m = W_{(n+1)\delta t}^m - W_{n\delta t}^m$, où $(W_t^m)_{t \geq 0, 1 \leq m \leq M}$ désigne M mouvements Browniens indépendants. On renvoie à [TL12] pour des illustrations numériques de cette approche.

On peut signaler qu'en pratique, l'efficacité de ces méthodes hors équilibre pour le calcul de l'énergie libre n'a pas été vraiment démontrée. Il apparaît en effet que la variance de l'estimateur (79) explose si la variation en temps de l'application $(z(t))_{0 \leq t \leq T}$ est trop rapide. On est donc amené à utiliser des variations assez lente, ce qui se rapproche alors d'une méthode d'intégration thermodynamique (cf. section 2.2.1). Mentionnons tout de même le travail [87], où les auteurs proposent un algorithme comprenant une étape de reconfiguration stochastique (du type de celle évoquée pour les algorithmes DMC, cf. section 2.1.3) pour mieux contrôler la variance de l'estimateur.

2.2.3 Méthodes adaptatives : algorithmes

Nous abordons dans cette section les méthodes qui ont été proposées le plus récemment pour calculer les différences d'énergie libre. Il s'agit des méthodes adaptatives, du type Wang-Landau [103], *Adaptive Biasing Force* [30, 50], ou *metadynamics* [56], par exemple. Dans [TL15], nous proposons un cadre unifié pour toutes ces méthodes, que nous résumons maintenant.

Le principe des méthodes adaptatives est le suivant. Il s'agit de modifier le potentiel vu par le processus X_t en fonction des configurations visitées, avec deux objectifs :

- (i) explorer de manière efficace l'espace des configurations,
- (ii) calculer le profil d'énergie libre.

Le potentiel modifié dépend du temps et est de la forme, pour tout $x \in \mathbb{R}^n$,

$$\mathcal{V}_t(x) = V(x) - A_t(\xi(x)),$$

où A_t est une approximation de l'énergie libre à l'instant t , au vu des configurations visitées par le système jusqu'à cet instant. On cherche à faire évoluer A_t de manière à ce que $\lim_{t \rightarrow \infty} A_t = A$ (cf. objectif (ii) ci dessus).

Pour comprendre comment mettre à jour A_t , faisons l'hypothèse un instant que le processus au temps t est immédiatement à l'équilibre par rapport au potentiel \mathcal{V}_t , *i.e.*, que

$$\psi(t, \cdot) = \psi^{\text{eq}}(t, \cdot) \propto \exp(-\beta \mathcal{V}_t)$$

où ψ désigne la densité de probabilité de la variable aléatoire X_t . On peut alors calculer une énergie libre observée, en remplaçant V par \mathcal{V}_t dans la formule (60) :

$$A_t^{\text{obs}}(z) = -\beta^{-1} \ln \left(\int_{\Sigma_z} \exp(-\beta \mathcal{V}_t) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z} \right)$$

et une force moyenne observée, en remplaçant V par \mathcal{V}_t dans la formule (64) :

$$\begin{aligned} (A_t^{\text{obs}})'(z) &= \frac{\int_{\Sigma_z} \left(\frac{\nabla \mathcal{V}_t \cdot \nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} - \beta^{-1} \text{div} \left(\frac{\nabla \xi}{|\nabla \xi|^2} \right) \right) \exp(-\beta \mathcal{V}_t) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int_{\Sigma_z} \exp(-\beta \mathcal{V}_t) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}, \\ &= \frac{\int_{\Sigma_z} F \exp(-\beta \mathcal{V}_t) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int_{\Sigma_z} \exp(-\beta \mathcal{V}_t) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}} - A_t'(z), \end{aligned}$$

où F désigne la force moyenne locale (66). Ici et dans toute la suite, on note par $'$ une dérivée par rapport à la variable z (la valeur de la coordonnée de réaction). On vérifie facilement que

$$A_t^{\text{obs}} = A - A_t \text{ et } (A_t^{\text{obs}})' = A' - A_t'. \quad (80)$$

Au vu de (80) et pour que $\lim_{t \rightarrow \infty} A_t = A$, il semble naturel de proposer les deux types de mise à jour suivantes (où l'on ne suppose plus cette fois le processus à l'équilibre : $\psi(t, \cdot)$ désigne la densité de probabilité de X_t) :

- Mise à jour du potentiel A_t (méthode de type *Adaptive Biasing Potential* (ABP))

$$\frac{\partial A_t}{\partial t}(z) = -\frac{1}{\tau} \beta^{-1} \ln \int \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}, \quad (81)$$

où τ désigne un paramètre numérique homogène à un temps ;

- Ou bien mise à jour de la force moyenne A_t' (méthode de type *Adaptive Biasing Force* (ABF))

$$\frac{\partial A_t'}{\partial t}(z) = \frac{1}{\tau} \left(\frac{\int F \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}} - A_t'(z) \right). \quad (82)$$

En effet, si on suppose dans (81) que $\psi = \psi^{\text{eq}}$, on obtient l'évolution suivante pour A_t : $\frac{\partial A_t}{\partial t} = \frac{1}{\tau} (A - A_t)$ et donc A_t converge bien vers A . Un raisonnement similaire tient pour (82). Si le processus était à l'équilibre à chaque instant ($\psi = \psi^{\text{eq}}$), on obtiendrait donc l'énergie

libre (ou sa dérivée, la force moyenne) en temps long. On espère que cela sera encore le cas sans cette hypothèse d'équilibre instantané. C'est l'objet de la section 2.2.4.

Il est important de noter que les deux approches (ABP et ABF) sont bien différentes, au sens où la dérivée de l'équation (81) par rapport à z n'est pas l'équation (82) (ce serait le cas si $\psi = \psi^{\text{eq}}$).

Remarquer également que la méthode est construite de telle sorte que si un état stationnaire est atteint, *i.e.* si $(\psi(t, \cdot), A_t)$ converge en temps long vers un couple (ψ_∞, A_∞) , alors, nécessairement, $A_\infty = A$ (à une constante additive près). Il suffit pour s'en rendre compte d'écrire les formules (81) et (82) avec $(\psi(t, \cdot), A_t) = (\psi_\infty, A_\infty)$.

Pour le moment, nous n'avons pas précisé la dynamique sous-jacente pour X_t : notre discussion est valable aussi bien pour une dynamique de Langevin (58), que pour une dynamique de gradient (56). Pour fixer les idées, écrivons le système complet pour une dynamique adaptative de type ABF (82) (en prenant formellement $\tau = \infty$: mise à jour instantanée de A'_t), construite à partir d'une dynamique de gradient (56) :

$$\begin{cases} dX_t = -\nabla(V - A_t \circ \xi)(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} dW_t, \\ A'_t(z) = \mathbb{E}(F(X_t) | \xi(X_t) = z), \end{cases} \quad (83)$$

où \circ désigne ici l'opérateur de composition et $\mathbb{E}(F(X_t) | \xi(X_t) = z)$ désigne une espérance conditionnelle. En terme de la densité $\psi(t, \cdot)$ de X_t , on a l'équation de Fokker-Planck associée :

$$\begin{cases} \partial_t \psi = \text{div}(\nabla(V - A_t \circ \xi)\psi + \beta^{-1} \nabla \psi), \\ A'_t(z) = \frac{\int_{\Sigma_z} F \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int_{\Sigma_z} \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}. \end{cases} \quad (84)$$

On vérifie que les équations (83) et (84) sont bien équivalentes, car la mesure conditionnée de la loi de probabilité $\psi(x) dx$ sachant que $\xi(x) = z$ est donnée par $\frac{\psi |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int \psi |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}$ (ceci découle de la formule de la co-aire (61)).

Cette dynamique est connue des physiciens [30, 50] sous le nom de *Adaptive Biasing Force method*, sous une forme "proche" où on approxime l'espérance conditionnelle par une moyenne ergodique (cf. la section suivante).

L'intérêt du cadre que nous proposons pour les algorithmes adaptatifs est qu'il permet de comprendre un grand nombre de méthodes adaptatives dans un formalisme similaire, et d'imaginer de nouvelles méthodes, notamment en jouant sur la manière de mettre à jour A_t et A'_t (on a ici donné la méthode la plus simple, pour simplifier l'exposé). On renvoie à [TL15] pour plus de détails. De plus, ce cadre permet d'étudier la (vitesse de) convergence de certains algorithmes adaptatifs (cf. section 2.2.4) et de proposer de nouvelles méthodes de discrétisation (cf. section 2.2.5).

Remarque 19 *D'un point de vue probabiliste, les méthodes adaptatives que nous avons décrites peuvent être vues comme des méthodes de réduction de variance par fonction d'importance, avec une fonction d'importance adaptative. En effet, en partant du principe que pour un bon choix de ξ , la dynamique (83) converge plus vite vers l'équilibre que la dynamique (56) (ce que l'on va démontrer dans la section suivante), on dispose d'une méthode qui permet d'échantillonner des mesures métastables. Cette remarque donne à ces méthodes une portée assez générique, du moins pour les applications dans lesquelles on peut intuitivement une bonne "direction de métastabilité". On donne cette "direction", et l'algorithme calcule automatiquement une bonne fonction d'importance "dans cette direction". Nous explorons dans [TL44] ces méthodes pour l'échantillonnage de mesures a posteriori en statistiques bayésiennes (qui sont connues pour être métastables).*

2.2.4 Méthodes adaptatives : étude théorique

L'objectif de cette section théorique est de prouver, pour la dynamique (83), que A'_t converge vers A' (objectif (ii) de la section précédente), et de déterminer à quelle vitesse la convergence a lieu (objectif (i) de la section précédente). Autrement dit, on cherche à déterminer en quoi est-ce que la dynamique (83) converge plus vite vers un état stationnaire que la dynamique de gradient (56) dont on a dit qu'elle était inutilisable en pratique car métastable. Cette section s'appuie sur l'article [TL20].

Pour montrer que la dynamique (83) va plus vite vers un état stationnaire que (56), il faut décider d'une mesure de la vitesse de convergence. Il y a plusieurs manières de quantifier un comportement métastable, comme par exemple le temps de sortie des puits de potentiel, la variance asymptotique des estimateurs considérés, le temps de "décorrélation" du processus X_t ou la vitesse de convergence de la loi de X_t vers μ . Dans la suite, c'est ce quatrième critère que l'on choisit.

Commençons par rappeler une analyse classique de la vitesse de convergence vers l'équilibre pour (56). On rappelle qu'associée à la dynamique (56), on peut écrire une équation de Fokker-Planck (linéaire) sur la densité ϕ de X_t solution de (56) :

$$\partial_t \phi = \operatorname{div}(\nabla V \phi + \beta^{-1} \nabla \phi). \quad (85)$$

Par une analyse basée sur une estimée d'entropie (cf. section 1.3.2), on montre que

$$H(\phi(t, \cdot), \phi_\infty) \leq H(\phi(0, \cdot), \phi_\infty) \exp(-2\beta^{-1} R t) \quad (86)$$

où $\phi_\infty = Z^{-1} \exp(-\beta V)$ est la densité de la mesure μ , et on a supposé que le potentiel V est tel que la mesure μ satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique de constante R (cf. Définition 4). Par l'inégalité de Csiszar-Kullback (24), on en déduit la convergence vers 0 de $\int |\phi(t, \cdot) - \phi_\infty|$ à vitesse exponentielle, avec un taux $\beta^{-1} R$. On considère donc dans la suite que (56) à un comportement métastable si et seulement si R est proche de 0. Cette définition est raisonnable au sens où : (i) on vérifie que R est effectivement très proche de 0 pour des potentiels comportant des puits séparés par des barrières très hautes (ce qui correspond à l'image intuitive d'un potentiel métastable) ; (ii) la "vraie" vitesse de convergence de la dynamique (56) serait donnée par le trou spectral de l'opérateur $\operatorname{div}(\nabla V \cdot + \beta^{-1} \nabla \cdot)$, et on peut montrer que la dégénérescence du trou spectral pour cet opérateur implique la dégénérescence de l'inégalité de Sobolev logarithmique pour la mesure μ (cf. [32, 11]).

Intéressons-nous maintenant à la dynamique (83). Nous allons appliquer une méthode d'entropie pour analyser la vitesse de convergence de cette dynamique vers son état stationnaire. La difficulté par rapport à l'étude de (56) et (85) est que l'équation de Fokker-Planck (84) est non-linéaire. Pour simplifier, nous supposons dans toute la suite que ξ est à valeurs dans le tore :

$$\xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{T}.$$

Les résultats se généralisent au cas où ξ est à valeurs dans un domaine non borné en ajoutant un potentiel confinant adéquat (cf. [TL20], un tel potentiel étant d'ailleurs utilisé en pratique pour les calculs d'énergie libre par de telles méthodes). De plus, nous allons légèrement modifier la dynamique (83) pour simplifier l'étude. Nous considérons dans la suite de cette section la dynamique :

$$\begin{cases} dX_t = -\nabla(V - A_t \circ \xi - \beta^{-1} \ln(|\nabla \xi|^{-2}))(X_t) |\nabla \xi|^{-2}(X_t) dt + \sqrt{2\beta^{-1}} |\nabla \xi|^{-1}(X_t) dW_t, \\ A'_t(z) = \mathbb{E}(F(X_t) | \xi(X_t) = z), \end{cases} \quad (87)$$

associée à l'équation de Fokker-Planck :

$$\begin{cases} \partial_t \psi = \operatorname{div} (|\nabla \xi|^{-2} (\nabla(V - A_t \circ \xi) \psi + \beta^{-1} \nabla \psi)) , \\ A'_t(z) = \frac{\int_{\Sigma_z} F \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int_{\Sigma_z} \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}} . \end{cases} \quad (88)$$

Remarquer que dans le cas où $|\nabla \xi| = 1$ (*i.e.* ξ est la distance signée à Σ_0) la dynamique (87) est exactement (88). Dans le cas général, nous avons besoin de rajouter les termes fonctions de $|\nabla \xi|$ pour simplifier l'analyse. On renvoie à [TL20] pour des résultats similaires sur la convergence de la dynamique originale (83).

Nous devons introduire quelques notations. On note ψ^ξ la "densité marginale de ψ selon ξ " :

$$\psi^\xi(t, z) = \int_{\Sigma_z} \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}. \quad (89)$$

On introduit également $\mu_t^\xi(dx|z)$ la mesure conditionnelle de $\psi(t, x) dx$ sachant que $\xi(x) = z$:

$$d\mu_t^\xi(dx|z) = \frac{\psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\psi^\xi(t, z)}. \quad (90)$$

La formulation "densité marginale" est justifiée par le fait que, par la formule de la co-aire (61), on vérifie que l'image de la mesure $\psi(t, x) dx$ par la fonction ξ est la mesure $\psi^\xi(t, z) dz$. Dans le cas $\xi(x_1, \dots, x_n) = x_1$ par exemple, on a simplement (par Fubini) $\psi^\xi(t, z) = \int \psi(t, z, x_2, \dots, x_n) dx_2 \dots dx_n$ et $d\mu_t^\xi(dx|z) = \frac{\psi(t, z, x_2, \dots, x_n) dx_2 \dots dx_n}{\psi^\xi(t, z)}$.

Une remarque fondamentale est la suivante :

Lemme 20 *Soit ψ solution de (88). Alors la marginale ψ^ξ de ψ selon ξ définie par (89) satisfait l'équation de la chaleur :*

$$\partial_t \psi^\xi - \beta^{-1} \partial_{z,z} \psi^\xi = 0 \text{ sur } \mathbb{T}. \quad (91)$$

Il est très facile de vérifier ce lemme dans le cas où $\xi(x_1, \dots, x_n) = x_1$, en intégrant l'équation (88) par rapport à x_2, \dots, x_n . Dans le cas général, la preuve est basée sur la formule de la co-aire (61). Ce premier résultat montre déjà qualitativement que la dynamique (87) va plus vite vers son état stationnaire que la dynamique (56), du moins si ξ a été bien choisi. On voit en effet que l'équation sur ψ^ξ est une équation de la chaleur, correspondant à un potentiel constant : en utilisant la dynamique adaptative, on a "aplatis" le potentiel dans la direction de la coordonnée de réaction. Si cette direction est bien la direction de métastabilité principale pour (56), on a donc très fortement amélioré la vitesse de convergence en utilisant (87).

Nous allons maintenant quantifier cela. Nous avons besoin de quelques notations supplémentaires. On note ψ_∞ la densité stationnaire attendue :

$$\psi_\infty = \exp(-\beta(V - A \circ \xi)).$$

A la densité de probabilité ψ_∞ , on associe sa marginale selon ξ (de manière consistante avec (89)) :

$$\psi_\infty^\xi(z) = 1_{\mathbb{T}}(z),$$

et la mesure conditionnelle de $\psi_\infty(x) dx$ sachant que $\xi(x) = z$ (de manière consistante avec (90)) :

$$d\mu_\infty^\xi(\cdot|z) = Z_{\Sigma_z}^{-1} \exp(-\beta V) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z},$$

où on rappelle que (cf. (60))

$$Z_{\Sigma_z} = \int_{\Sigma_z} |\nabla \xi|^{-1} \exp(-\beta V) d\sigma_{\Sigma_z} = \exp(-\beta A(z)).$$

Pour ψ une solution de (88), on introduit l'entropie totale :

$$E(t) = H(\psi(t, \cdot) | \psi_\infty),$$

l'entropie macroscopique :

$$E_M(t) = H(\psi^\xi(t, \cdot) | \psi_\infty^\xi),$$

l'entropie locale à une valeur z de la coordonnée de réaction :

$$e_m(t, z) = H\left(\mu_t^\xi(\cdot | z) \middle| \mu_\infty^\xi(\cdot | z)\right) = \int_{\Sigma_z} \ln\left(\frac{\psi(t, \cdot)}{\psi^\xi(t, z)} \middle/ \frac{\psi_\infty}{\psi_\infty^\xi(z)}\right) \frac{\psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\psi^\xi(t, z)},$$

et enfin l'entropie microscopique

$$E_m(t) = \int_{\mathcal{M}} e_m(t, z) \psi^\xi(t, z) dz.$$

On vérifie facilement que

$$E(t) = E_M(t) + E_m(t).$$

Noter qu'en utilisant le Lemme 20, on sait déjà que ψ^ξ converge vers son état stationnaire ψ_∞^ξ à vitesse exponentielle. En particulier :

$$E_M(t) \leq E_M(0) \exp(-2\beta^{-1}rt), \quad (92)$$

où

$$r = 4\pi^2 \quad (93)$$

est appelé dans la suite taux de convergence macroscopique. Pour étudier la convergence de ψ vers ψ_∞ , il suffit donc d'étudier la convergence de E_m vers zéro.

Les dénominations "macroscopique" et "microscopique" font ici référence au fait que ξ est considéré comme une fonction qui à une configuration associe une grandeur macroscopique (variable lente). Les variables "orthogonales à ξ " (dans une feuille Σ_z) sont au contraire des grandeurs microscopiques (variables rapides).

Dans [TL20], on montre le résultat suivant :

Théorème 21 *On suppose :*

- (H1) $\xi : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{T}$ est une fonction régulière telle que $|\nabla \xi| > 0$.
- (H2) V et ξ sont des fonctions régulières telles que $\|\nabla \xi\|_{L^\infty} \leq m < \infty$ et $\|\nabla_{\Sigma_z} F\|_{L^\infty} \leq M < \infty$ (où $\nabla_{\Sigma_z} = P\nabla$ (cf. (70)) désigne le gradient surfacique),
- (H3) V et ξ sont telles que $\exists \rho > 0, \forall z \in \mathbb{T}$, la mesure conditionnelle $\mu_\infty^\xi(\cdot | z)$ satisfait une inégalité de Sobolev logarithmique de constante ρ .

Alors, on montre que

1. L'entropie microscopique E_m converge à vitesse exponentielle vers zéro : $\exists C > 0, \exists \lambda > 0, \forall t \geq 0$,

$$\sqrt{E_m(t)} \leq C \exp(-\lambda t). \quad (94)$$

Plus précisément, si $\rho m^{-2} \neq r$, alors

$$\lambda = \beta^{-1} \min(\rho m^{-2}, r). \quad (95)$$

Dans le cas particulier $\rho m^{-2} = r$, pour tout $\lambda < \beta^{-1} \min(\rho m^{-2}, r)$, il existe $C > 0$ tel que (94) est vérifié.

2. La racine carrée de l'entropie totale \sqrt{E} , les quantités $\|\psi(t, \cdot) - \psi_\infty\|_{L^1(\mathbb{R}^n)}$ et $\|A'_t - A'\|_{L^2(\mathbb{T})}^2$ convergent exponentiellement vite vers zéro au taux λ .

La preuve est basée sur un calcul explicite de $\frac{dE_m}{dt}$ et sur une majoration de $|A'_t(z) - A'(z)|$ par l'entropie relative de $\mu_t^\xi(\cdot|z)$ par rapport à $\mu_\infty^\xi(\cdot|z)$, basée sur une inégalité de Talagrand.

Ces résultats montrent donc que, essentiellement sous une hypothèse de couplage borné (H2) (cf. remarque 22 pour une justification de ce terme) et une hypothèse d'ergodicité des variables microscopiques (H3), A'_t converge exponentiellement vite vers A' au taux $\lambda = \beta^{-1} \min(\rho m^{-2}, r)$, qui doit être comparé à $\beta^{-1} R$ dans (86). Le taux de convergence λ est en fait seulement limité par la constante ρ de l'inégalité de Sobolev logarithmique pour les mesures conditionnelles $\mu_\infty^\xi(\cdot|z)$. En effet, on peut rendre en pratique r aussi grand que l'on veut de deux façons : en restreignant le domaine de calcul de l'énergie libre, ou en utilisant une méthode de sélection pour accélérer la convergence de ψ^ξ vers ψ_∞^ξ (cf. section 2.2.5). La valeur de ρ dépend évidemment du choix de la coordonnée de réaction. Dans notre langage, une "bonne coordonnée de réaction" est telle que ρ est aussi grand que possible.

Pour une généralisation de ces résultats (cas où ξ est à valeurs dans \mathbb{T}^p ou \mathbb{R}^p , cas de la dynamique ABF non-modifiée (83), discussion d'autres jeux d'hypothèses possibles), nous renvoyons à [TL20].

Remarque 22 *Il est naturel à ce stade de se poser la question suivante : sous les hypothèses du théorème 21, que peut-on dire de la constante de Sobolev logarithmique R pour la mesure "totale" μ . Dans [TL23], nous généralisons un résultat de [47] à une fonction ξ non-linéaire en montrant le critère suivant (appelé "critère à double-échelle") pour prouver une inégalité de Sobolev logarithmique pour la mesure μ . Si on suppose : (i) la marginale de μ selon ξ satisfait une ISL(\bar{r}), (ii) les mesures conditionnelles de μ à $\xi(x) = z$ fixé satisfont une ISL(ρ) (ce qui est (H3) dans le théorème 21), (iii) V et ξ sont tels que $\|\nabla_{\Sigma_z} F\|_{L^\infty} \leq M < \infty$ et $|\nabla \xi|^2 \geq m > 0$ (ce qui est relié à (H2) dans le théorème 21), alors μ satisfait une ISL de constante R avec*

$$R \geq \frac{1}{2} \left(\bar{r}m + \frac{M^2 m}{\rho} + \rho - \sqrt{\left(\bar{r}m + \frac{M^2 m}{\rho} + \rho \right)^2 - 4\bar{r}m\rho} \right).$$

On sait prouver l'égalité pour des lois normales et une fonction ξ linéaire. Noter que le membre de droite est majoré par $\min(\bar{r}m, \rho)$, qui correspond au cas d'un couplage nul ($M = 0$). L'hypothèse (iii) est appelée une hypothèse de couplage borné, car dans le cas particulier d'une loi normale et d'une fonction ξ linéaire, $\|\nabla_{\Sigma_z} F\|_{L^\infty}$ mesure la covariance entre les composantes microscopiques et les composantes macroscopiques.

Pour revenir à la question posée au début de cette remarque, on voit que la constante de Sobolev logarithmique R pour la mesure de Boltzmann-Gibbs μ est typiquement beaucoup plus petite que λ car la constante de Sobolev logarithmique pour la marginale de μ selon ξ (notée \bar{r} ci-dessus) est typiquement beaucoup plus petite que la constante de Sobolev logarithmique pour la marginale de ψ_∞ selon ξ (notée r ci-dessus). On peut à nouveau penser à l'exemple très simple de la Figure 2 pour lequel \bar{r} et R sont très petits pour une grande barrière de potentiel, comparativement aux constantes r et ρ .

2.2.5 Méthodes adaptatives : discrétisation

Dans cette section, on discute la discrétisation des méthodes adaptatives, en considérant (87) pour fixer les idées. Les schémas de discrétisation proposés sont généralisables à

d'autres dynamiques adaptatives comme celles évoquées dans la section 2.2.3, y compris quand elles sont construites à partir d'une dynamique de Langevin (58).

Dans la communauté "dynamique moléculaire", les physiciens utilisent plus volontiers des moyennes ergodiques sur de longues trajectoires que des moyennes empiriques sur plusieurs marcheurs pour calculer des moyennes. Ainsi, plutôt qu'une espérance conditionnelle, une méthode du type (87) utiliserait typiquement une mise à jour :

$$A'_t(z) = \frac{\int_0^t F(X_s) \delta^\epsilon(\xi(X_s) - z) ds}{\int_0^t \delta^\epsilon(\xi(X_s) - z) ds},$$

où δ^ϵ désigne une approximation de l'identité. Dans [TL15], nous proposons d'utiliser plutôt des systèmes particuliers, avec plusieurs marcheurs en interaction et des moyennes empiriques. Ainsi, une approximation particulière de (87) s'écrit : pour $1 \leq n \leq N$, N désignant le nombre total de marcheurs,

$$\begin{cases} dX_t^{n,N} = -\nabla(V - A_t^N \circ \xi - \beta^{-1} \ln(|\nabla \xi|^{-2}))(X_t^{n,N}) |\nabla \xi|^{-2}(X_t^{n,N}) dt \\ \quad + \sqrt{2\beta^{-1}} |\nabla \xi|^{-1}(X_t^{n,N}) dW_t^n, \\ (A_t^N)'(z) = \frac{\sum_{m=1}^N F(X_t^{m,N}) \delta^\epsilon(\xi(X_t^{m,N}) - z)}{\sum_{m=1}^N \delta^\epsilon(\xi(X_t^{m,N}) - z)}, \end{cases} \quad (96)$$

où $(W_t^n)_{t \geq 0, n \geq 1}$ désigne une famille de mouvements browniens indépendants. Cette approche est plus facile à analyser mathématiquement, très facilement parallélisable, et permet en outre d'ajouter des mécanismes de sélection pour sélectionner les "bons marcheurs" et tuer les "mauvais" afin d'accélérer la convergence (cf. ci-dessous). En pratique, on utilise plutôt une discrétisation par histogramme de $(A_t^N)'$ qu'une approximation de l'identité, mais la discrétisation (96) reste représentative des méthodes standards, qui comportent typiquement trois paramètres de discrétisation : le pas de temps, le nombre de marcheurs N , et un paramètre ϵ donnant la taille caractéristique de discrétisation de la variable coordonnée de réaction.

Dans [TL37], nous analysons la vitesse de convergence du système particulier (96) dans le cas particulier où $\xi(x_1, \dots, x_n) = x_1$ et l'espace de configuration est \mathbb{T}^n ou $\mathbb{T} \times \mathbb{R}^{n-1}$. Nous montrons notamment que l'erreur comporte un terme $\frac{C(T, \epsilon)}{\sqrt{N}}$, avec une constante $C(T, \epsilon)$ qui dépend du temps maximum T et du paramètre ϵ . L'expression de C que nous obtenons est cependant sous-optimale par rapport aux résultats numériques.

Nous terminons cette section en explicitant un exemple de mécanisme de sélection possible, proposé dans [TL15]. On modifie la dynamique (88) en considérant : pour une constante $c > 0$

$$\begin{cases} \partial_t \psi = \operatorname{div}(|\nabla \xi|^{-2} (\nabla(V - A_t \circ \xi) \psi + \beta^{-1} \nabla \psi)) + c \left(\frac{\partial_{z,z} \psi^\xi}{\psi^\xi} \right) \circ \xi \psi, \\ A'_t(z) = \frac{\int_{\Sigma_z} F \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}{\int_{\Sigma_z} \psi(t, \cdot) |\nabla \xi|^{-1} d\sigma_{\Sigma_z}}. \end{cases} \quad (97)$$

On vérifie facilement que cette dynamique modifiée est encore telle que, si un état stationnaire (ψ_∞, A'_∞) est atteint, alors $A'_\infty = A'$. De plus, par un calcul similaire à celui permettant de prouver le Lemme 20, on montre que la marginale ψ^ξ de ψ suivant ξ satisfait alors (comparer avec (91)) :

$$\partial_t \psi^\xi - (\beta^{-1} + c) \partial_{z,z} \psi^\xi = 0 \text{ sur } \mathbb{T}.$$

L'ajout du terme supplémentaire dans Fokker-Planck permet donc d'améliorer la "vitesse de convergence macroscopique", qui est celle reliée au paramètre r de la section précédente (cf. (93)). La diffusion dans l'espace de la coordonnée de réaction est plus rapide.

Le système particulaire associé à (97) consiste à modifier (96) en associant un poids

$$w_{n,N}(t) = \exp \left(c \int_0^t \frac{\partial_{z,z} \psi^\xi}{\psi^\xi} (\xi(X_s^{n,N})) ds \right)$$

à la particule $(X_t^{n,N})$ et à effectuer une moyenne pondérée par ces poids pour le calcul de $(A_t^N)'$ dans (96). En pratique, on effectue de temps en temps une étape de reconfiguration stochastique, en dupliquant (respectivement tuant) les marcheurs qui ont le poids le plus élevé (respectivement le plus faible), en gardant un nombre total de marcheurs constant (dans l'esprit des algorithmes DMC, cf. section 2.1.3, et de [35]).

La quantité $\frac{\partial_{z,z} \psi^\xi}{\psi^\xi}$ est discrétisée par une méthode d'histogramme pour approximer ψ^ξ et des différences finies :

$$\begin{aligned} \frac{\partial_{z,z} \psi^\xi}{\psi^\xi}(z) &\simeq \frac{\psi^\xi(z + \delta z) - 2\psi^\xi(z) + \psi^\xi(z - \delta z)}{\psi^\xi(z) \delta z^2}, \\ &\simeq \frac{3}{\psi^\xi(z) \delta z^2} \left(\frac{\psi^\xi(z + \delta z) + \psi^\xi(z) + \psi^\xi(z - \delta z)}{3} - \psi^\xi(z) \right). \end{aligned}$$

Ainsi, la méthode donne plus de poids aux particules qui sont dans des régions moins explorées que les régions voisines.

On renvoie à [TL15] pour des expériences numériques montrant l'intérêt de cette méthode sur un exemple concret. En pratique, on observe qu'il existe un optimum pour le paramètre c : si c devient trop grand, la variance des résultats augmente ce qui dégrade le résultat (noter qu'augmenter c revient à augmenter la disparité des poids et donc à diminuer le nombre effectif de marcheurs contribuant à la moyenne donnant $(A_t^N)'(z)$).

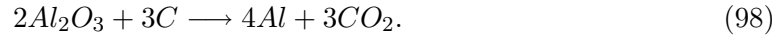
3 Ecoulements à surface libre et magnétohydrodynamique

Dans cette dernière section, nous abordons des problèmes issus d’une collaboration avec l’entreprise Rio Tinto (anciennement Alcan puis Pechiney) sur le thème de la modélisation des cuves d’électrolyse de l’aluminium. On renvoie au livre [TL39] pour une présentation plus complète.

3.1 Problématique industrielle et modélisation

3.1.1 La cuve d’électrolyse de l’aluminium

Le principe de fabrication de l’aluminium est de faire passer un courant d’intensité élevée (typiquement $300kA$) dans un bain cryolithique contenant un oxyde d’aluminium : l’alumine. Par électrolyse, l’alumine est réduit en aluminium selon la réaction :



Par l’effet Joule (le bain étant un milieu résistant), les deux matériaux (bain et aluminium) sont liquides (la température avoisine $1000^\circ C$). Nous sommes donc en présence de deux fluides non-miscibles, séparés par une interface, et traversés par un courant électrique de forte intensité. L’aluminium est légèrement plus dense que le bain et tombe donc au fond de la cuve. Une différence importante entre les deux fluides est leur conductivité : l’aluminium est 10000 fois plus conducteur que le bain.

Sur la Figure 3, on donne une représentation schématique en coupe d’une cuve d’électrolyse. Le courant arrive par les anodes dans la cuve. Les anodes sont en carbone, et sont consommées au cours de la réaction d’électrolyse (cf. (98)) : elles sont abaissées durant le processus industriel, de manière à garder une distance entre la surface anodique et l’aluminium (appelée Distance Anode Métal ou DAM) à peu près constante. Le courant traverse ensuite les deux fluides (le bain, puis l’aluminium), puis rejoint la cathode. Les dimensions horizontales de la cuve sont typiquement $3m \times 9m$. La hauteur d’aluminium est de l’ordre de $20cm$, tandis que la DAM est d’environ $5cm$. La cuve est régulièrement alimentée en alumine, et les anodes sont périodiquement remplacées. Nous n’avons pas représenté sur la

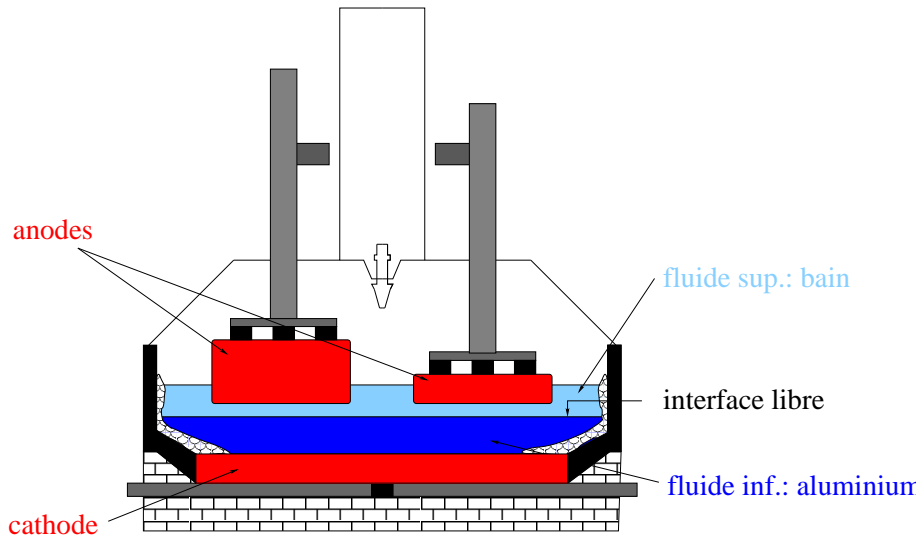


FIG. 3 – Coupe schématique d’une cuve d’électrolyse de l’aluminium.

Figure 3 l’ensemble des conducteurs qui amènent le courant à la cuve. Le positionnement

de ces conducteurs (de même que celui des cuves voisines) joue un rôle important car il détermine le champ magnétique créé dans la cuve (d'une intensité de l'ordre de $10^{-2} T$, à comparer au champ magnétique terrestre de l'ordre de $5.10^{-5} T$), sous l'influence duquel les fluides se mettent en mouvement (entraînés par la force de Laplace ou Lorentz). Par conséquent, l'interface libre entre les deux fluides bouge. Un des challenges industriels est de réduire la DAM (pour réduire les pertes d'énergie par effet Joule) et d'augmenter l'intensité (pour produire plus), tout en évitant que la nappe d'aluminium ne touche la surface anodique (ce qui court-circuite la cuve et arrête donc la réaction d'électrolyse). Les mesures sont très difficiles car l'environnement chimique et physique est particulièrement mal adapté aux appareils de mesure. Un gros effort a donc été consacré depuis une quarantaine d'années à la modélisation des cuves d'électrolyse de l'aluminium pour comprendre les phénomènes, les prévoir et les contrôler (cf. Chapitre 6 dans [TL39]).

3.1.2 Modélisation magnétohydrodynamique

Dans la collaboration entamée entre l'équipe du CERMICS et les industriels dans les années 1990, l'objectif a porté sur la modélisation des phénomènes magnétiques et hydrodynamiques. Le modèle consiste en un couplage entre les équations de Navier-Stokes pour deux fluides non miscibles et les équations de Maxwell. Le couplage se fait par la force de Lorentz, et la loi d'Ohm qui tient compte des courants induits. Un point important de la modélisation est que l'on décide que le domaine de calcul est seulement constitué de l'ensemble des deux fluides, qui occupent un domaine $\Omega \subset \mathbb{R}^3$ (la cuve) : ceci est naturel pour le champ de vitesse, mais moins pour le champ magnétique (les équations de Maxwell sont *a priori* posées dans tout \mathbb{R}^3). De plus, on néglige les courants de déplacements dans les équations de Maxwell. En écrivant alors la loi d'Ohm dans les fluides, on peut reformuler les équations de Maxwell sous la forme d'une équation parabolique (et non plus hyperbolique) avec comme seule inconnue l'induction magnétique (le champ électrique disparaît). L'inconvénient est qu'il faut nourrir le modèle avec des conditions aux limites sur le champ magnétique qui ne sont pas très simples à calculer, et qui doivent tenir compte du paramètre industriel important mentionné ci-dessus : la position des conducteurs autour de la cuve.

Voici le système d'équations considéré (on renvoie au chapitre 1 de [TL39] pour plus de détails sur la dérivation de ce système à partir des trois ingrédients : équations de Navier-Stokes pour deux fluides soumis à la force de Lorentz, équations de Maxwell et loi d'Ohm dans un fluide conducteur) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial}{\partial t}(\rho u) + \operatorname{div}(\rho u \otimes u) - \operatorname{div}(\eta(\rho)(\nabla u + \nabla u^T)) = -\nabla p + \rho g + \frac{1}{\mu} \operatorname{rot} B \times B, \\ \operatorname{div} u = 0, \end{array} \right. \\ \frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho u) = 0, \\ \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial B}{\partial t} + \frac{1}{\mu} \operatorname{rot} \left(\frac{1}{\sigma(\rho)} \operatorname{rot} B \right) = \operatorname{rot}(u \times B), \\ \operatorname{div} B = 0, \end{array} \right. \end{array} \right. \quad (99)$$

où $u : [0, T] \times \Omega \mapsto \mathbb{R}^d$ désigne la vitesse, $p : [0, T] \times \Omega \mapsto \mathbb{R}$ la pression, $B : [0, T] \times \Omega \mapsto \mathbb{R}^d$ le champ magnétique (ou plutôt l'induction magnétique), $\rho : [0, T] \times \Omega \mapsto \mathbb{R}$ la densité du fluide, $\eta : \mathbb{R} \mapsto \mathbb{R}$ sa viscosité, $\sigma : \mathbb{R} \mapsto \mathbb{R}$ sa conductivité, $\mu \in \mathbb{R}$ la perméabilité du vide (une constante), et $g \in \mathbb{R}^d$ le vecteur gravitation. On a noté \times le produit vectoriel et \otimes le produit tensoriel. A l'instant initial, on se donne un champ de vitesse, un champ

magnétique, et on suppose que pour la densité

$$\rho(t = 0, \cdot) = \begin{cases} \rho_1 > 0, & \text{constante sur } \Omega_1, \\ \rho_2 > 0, & \text{constante sur } \Omega_2, \\ \text{avec } \overline{\Omega_1} \cup \overline{\Omega_2} = \overline{\Omega}, & |\Omega_i| > 0, i = 1, 2, \end{cases}$$

où $|\Omega_i|$ désigne la mesure de Lebesgue de Ω_i . Ainsi le domaine de calcul total $\Omega \subset \mathbb{R}^d$ (avec $d = 2$ ou $d = 3$) est séparé initialement entre une partie occupée par l'aluminium (en bas) notée Ω_1 et une partie occupée par le bain (en haut) notée Ω_2 . On suppose dans la suite et pour simplifier que Ω est fixé : seule l'interface entre les deux fluides bouge (mais le modèle et le schéma numérique se généralisent facilement pour tenir compte d'une surface libre, par exemple). Le fait que ρ ne prenne que deux valeurs ρ_1 ou ρ_2 à $t = 0$ se propage en temps, et on peut donc définir le domaine occupé par le fluide i à l'instant t par :

$$\Omega_{i,t} = \{x \in \Omega, \rho(t, x) = \rho_i\}.$$

On note dans la suite Σ_t l'interface séparant les deux fluides :

$$\Sigma_t = \partial\Omega_{1,t} \cap \partial\Omega_{2,t}.$$

Noter que dans le système d'équations (99) et conformément à la définition des domaines $\Omega_{i,t}$, on repère un fluide par la valeur de la densité ρ ce qui explique pourquoi η et σ sont des fonctions de ρ . Dans la suite, on note η_i (respectivement σ_i) la valeur $\eta(\rho_i)$ (respectivement $\sigma(\rho_i)$).

Il convient de préciser les conditions aux limites. Au niveau de l'interface Σ_t , on a implicitement supposé la continuité de plusieurs grandeurs en écrivant les équations (99) (à comprendre au sens des distributions dans Ω). On a supposé le champ de vitesse et le champ magnétique continus (ce qui revient à supposer un équilibre thermodynamique local sur l'interface). On a également supposé la continuité de la composante normale de la contrainte (on reviendra sur cette hypothèse en discutant la prise en compte de la tension de surface dans la section 3.4) et la continuité de la composante tangentielle du champ électrique (par la loi d'Ohm, on a $\frac{1}{\mu}\text{rot}B = \sigma(E + u \times B)$ où E est le champ électrique) : sur Σ_t

$$\begin{cases} (-p\text{Id} + \eta_1(\nabla u + \nabla u^T)) \Big|_{\Omega_1} \cdot n_\Sigma = (-p\text{Id} + \eta_2(\nabla u + \nabla u^T)) \Big|_{\Omega_2} \cdot n_\Sigma, \\ \left(\frac{1}{\mu\sigma_1} \text{rot}(B) - u \times B \right) \Big|_{\Omega_1} \times n_\Sigma = \left(\frac{1}{\mu\sigma_2} \text{rot}(B) - u \times B \right) \Big|_{\Omega_2} \times n_\Sigma, \end{cases} \quad (100)$$

où n_Σ désigne la normale à Σ_t sortante à $\Omega_{1,t}$. Enfin, au bord du domaine Ω , on suppose pour le champ magnétique des conditions aux limites du type

$$\begin{cases} B \cdot n_{\partial\Omega} = B_0 \cdot n_{\partial\Omega}, \\ \text{rot}B \times n_{\partial\Omega} = \text{rot}B_0 \times n_{\partial\Omega}, \end{cases} \quad (101)$$

ou

$$B \times n_{\partial\Omega} = B_0 \times n_{\partial\Omega}, \quad (102)$$

où $n_{\partial\Omega}$ désigne la normale sortante à Ω , et B_0 est un champ magnétique donné (obtenu par des mesures sur sites, ou par des calculs de magnétostatique prenant en compte la configuration des conducteurs et le caractère ferromagnétique des parois de la cuve). On peut vérifier que le problème magnétique est bien posé avec l'un ou l'autre jeu de conditions au bord ((101) ou (102)). On renvoie à la section 3.8 de [TL39] pour une discussion de ces

conditions aux limites. Pour les conditions aux limites sur le champ de vitesse, on suppose typiquement une condition de collement ($u = 0$) au fond de la cuve et une condition de glissement pur ($u \cdot n_{\partial\Omega} = 0$ et la contrainte de cisaillement est nulle) sur les parois latérales. Noter qu'on choisit une condition de glissement sur la vitesse sur les parois latérales pour permettre aux points du bord de l'interface $\partial\Sigma_t$ de bouger, ce qui semble naturel d'un point de vue de modélisation. Les points du bord de l'interface resteraient fixes avec une condition de collement pur, ce qui serait pourtant la condition aux limites standard pour un fluide visqueux. Nous reviendrons sur ce point de modélisation dans la section 3.4.

Dans la suite, nous nous intéressons à des questions de discrétisation, d'analyse numérique des schémas, et de modélisation du mouvement des points du bord de l'interface. Nous renvoyons aux chapitres 2 et 4 de [TL39] pour une analyse mathématique du caractère bien posé du système (99).

Remarque 23 *Nous avons décrit la modélisation dans le cadre de l'application industrielle de la modélisation magnétohydrodynamique des cuves de l'électrolyse de l'aluminium. On obtient un modèle pour un fluide visqueux incompressible avec surface libre en prenant $B = 0$, et en ne considérant que le domaine $\Omega_{1,t}$ avec une condition aux limites de type contrainte nulle sur la surface libre Σ_t (i.e. $(-p\text{Id} + \eta_1(\nabla u + \nabla u^T)) \Big|_{\Omega_1} \cdot n_\Sigma = 0$ sur Σ_t à la place de (100)). D'un point de vue mathématique, le magnétisme ne complique pas vraiment le système d'équations par rapport à la situation d'un fluide avec surface libre, car les équations de Maxwell sont réduites à un problème parabolique grâce à la loi d'Ohm. Autrement dit, les difficultés essentielles pour analyser et discrétiser les équations sont contenues dans le cas du modèle d'un fluide avec surface libre.*

3.2 Discrétisation par la méthode *Arbitrary Lagrangian Eulerian*

La discrétisation que nous proposons est basée sur un maillage mobile, avec un suivi explicite de l'interface, appelée méthode *Arbitrary Lagrangian Eulerian* ou ALE (cf. [22, 52, 90, 75] pour quelques exemples d'utilisation de cette méthode). Pour que les points du maillage situés sur l'interface suivent le déplacement de l'interface, il faut que la composante normale de la vitesse de déplacement du maillage sur l'interface soit égale à la composante normale de la vitesse des fluides sur l'interface. C'est le caractère lagrangien de la méthode. Ailleurs dans le domaine, le déplacement du maillage est arbitraire, et fait de telle sorte à ne pas trop distordre les mailles. C'est le caractère arbitraire et eulérien de la méthode. L'objectif de cette section est de présenter la méthode ALE, et ses principales propriétés. Pour une présentation plus complète, nous renvoyons au chapitre 5 de [TL39] et à [TL02].

Il existe bien d'autres méthodes de suivi d'interface (notamment des méthodes utilisant un maillage fixe, comme les méthodes de type *Volume Of Fluid* [53], ou *level set* [93]). L'intérêt des méthodes ALE est double : elles sont reconnues pour être très précises dans la détermination de la position de l'interface, et la discrétisation par une méthode ALE peut être analysée mathématiquement (on peut montrer rigoureusement, pour une méthode ALE après discrétisation en temps et en espace, la conservation de la masse de chacun des fluides ou encore la stabilité en norme d'énergie du schéma numérique (cf. section 3.2.3) : ceci semble difficile pour d'autres méthodes). L'inconvénient majeur des méthodes ALE est qu'elles ne permettent pas facilement de suivre des interfaces dans le cas de changements topologiques (vague déferlante, création d'une goutte, etc...). Dans ce cas, un remaillage peut-être nécessaire, ce qui rend la méthode beaucoup plus lourde. Dans le cadre de l'application industrielle considérée, la méthode ALE semble donc appropriée car un repérage précis de l'interface est requis et les fluides bougent suffisamment peu pour ne pas avoir de distorsions trop grandes du maillage au cours du calcul.

3.2.1 Formulation faible

La méthode ALE est basée sur une application $\hat{\mathcal{A}}_t$ qui envoie un domaine de référence $\hat{\Omega}$ (divisé en deux sous-domaines d'intersection vide $\hat{\Omega}_1$ et $\hat{\Omega}_2$ de telle sorte que $\hat{\Omega} = \hat{\Omega}_1 \cup \hat{\Omega}_2$) sur le domaine Ω à l'instant t , de telle sorte que $\hat{\mathcal{A}}_t(\hat{\Omega}_i) = \Omega_i(t)$ (cf.figure 4). L'inverse de la fonction $\hat{\mathcal{A}}_t$ (par rapport à la variable d'espace) est notée $\hat{\mathcal{A}}_t^{-1}$.

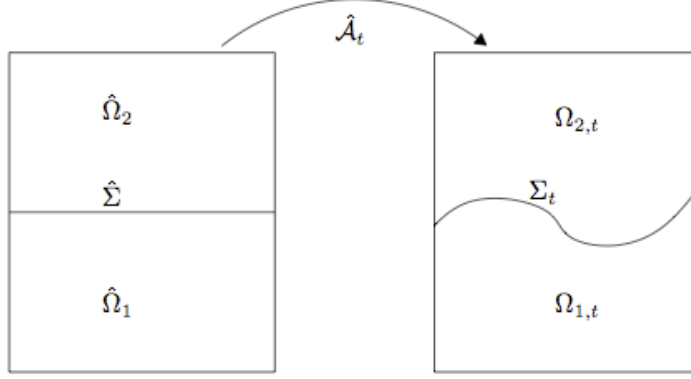


FIG. 4 – Dans la méthode ALE, un domaine de référence est envoyé sur le domaine actuel par une application $\hat{\mathcal{A}}_t$.

La vitesse du domaine \hat{w} est définie par :

$$\hat{w}(t, \hat{x}) = \frac{\partial}{\partial t} \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x}). \quad (103)$$

Pour toute fonction $\psi(t, \cdot)$ définie sur Ω , on note $\hat{\psi}(t, \cdot)$ la fonction correspondante transportée sur le domaine de référence $\hat{\Omega}$ par le changement de variable :

$$\hat{\psi}(t, \hat{x}) = \psi(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x})). \quad (104)$$

Par exemple, la vitesse du domaine w dans le référentiel courant est donnée par :

$$w(t, x) = \hat{w}(t, \hat{\mathcal{A}}_t^{-1}(x)). \quad (105)$$

Remarquer que les fonctions ψ et $\hat{\psi}$ vérifient :

$$\frac{\partial \hat{\psi}}{\partial t}(t, \hat{x}) = \frac{\partial \psi}{\partial t}(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x})) + w(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x})) \cdot \nabla \psi(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x})). \quad (106)$$

Le fait que $\hat{\mathcal{A}}_t$ envoie $\hat{\Omega}_i$ sur $\Omega_i(t)$ ($i = 1$ ou 2) est équivalent au fait que la vitesse du domaine satisfait :

$$w \cdot n_{\partial\Omega_i} = u \cdot n_{\partial\Omega_i} \text{ sur } \partial\Omega_i, \quad (107)$$

avec $i = 1$ ou $i = 2$, et $n_{\partial\Omega_i}$ le vecteur normal sortant à Ω_i . La densité ρ du fluide vérifie :

$$\rho(t, x) = \hat{\rho}(\hat{\mathcal{A}}_t^{-1}(x)), \quad (108)$$

où $\hat{\rho}$ est par définition égal à ρ_1 sur $\hat{\Omega}_1$ et ρ_2 sur $\hat{\Omega}_2$.

Dans la suite, pour simplifier la présentation, on considère les conditions aux limites (101) sur B , avec $B_0 = 0$. On introduit les espaces fonctionnels suivants, respectivement pour la vitesse u , le champ magnétique B , et la pression p :

$$V = W = L^2(0, T; \mathbb{H}_n^1(\Omega)), \quad M = L^2(0, T; L_0^2(\Omega)),$$

où

$$\mathbb{H}_n^1(\Omega) = \left\{ u \in (H^1(\Omega))^d, u \cdot n_{\partial\Omega} = 0 \text{ sur } \partial\Omega \right\},$$

et

$$L_0^2(\Omega) = \left\{ p \in L^2(\Omega), \int_{\Omega} p = 0 \right\}.$$

On introduit l'espace des fonctions tests sur le domaine de référence :

$$\hat{V} = \hat{W} = \mathbb{H}_n^1(\hat{\Omega}), \quad \hat{M} = L_0^2(\hat{\Omega}).$$

Dans le référentiel actuel, les espaces de fonctions tests sont définis par :

$$V_T = W_T = \{v : [0, T] \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}^d, v(t, x) = \hat{v}(\hat{\mathcal{A}}_t^{-1}(x)), \hat{v} \in \hat{V}\}, \quad (109)$$

$$M_T = \{q : [0, T] \times \Omega \rightarrow \mathbb{R}, q(t, x) = \hat{q}(\hat{\mathcal{A}}_t^{-1}(x)), \hat{q} \in \hat{M}\}. \quad (110)$$

Ainsi, les fonctions tests ne dépendent pas du temps dans le référentiel de référence (pour $\hat{x} \in \hat{\Omega}$, $v(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x}))$ ne dépend pas du temps), alors qu'elles en dépendent dans le référentiel courant. L'intérêt de ce choix de fonctions tests est que numériquement (après discrétisation en temps et en espace de la formulation variationnelle), la méthode ne nécessite à aucun moment la réinterpolation d'une fonction après un mouvement du maillage.

Nous introduisons maintenant la formulation faible ALE du problème (99). Il s'agit de résoudre le problème suivant : trouver une fonction $\hat{\mathcal{A}}_t : \hat{\Omega} \rightarrow \Omega$ (en pratique, l'inconnue sera plutôt la vitesse du domaine w) et $(u, B, p) \in V \times W \times M$ tels que $(u, B)(t = 0, \cdot) = (u_0, B_0)$ et :

- La fonction $\hat{\mathcal{A}}_t$ est régulière et envoie $\hat{\Omega}_i$ sur $\Omega_i(t)$ ($i = 1$ ou 2). Les domaines $\Omega_i(t)$ occupés par chacun des fluides sont ainsi définis par $\hat{\mathcal{A}}_t$ et la densité ρ du fluide est définie par :

$$\rho(t, x) = \hat{\rho}(\hat{\mathcal{A}}_t^{-1}(x)) = \rho_i, \quad \text{pour } x \in \Omega_i(t). \quad (111)$$

- Pour tout (v, C, q) dans $V_T \times W_T \times M_T$,

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \int_{\Omega} \rho u \cdot v + \int_{\Omega} \rho(u - w) \cdot \nabla u \cdot v - \int_{\Omega} \operatorname{div}(w) \rho u \cdot v \\ \quad + \int_{\Omega} \frac{\eta}{2} (\nabla u + \nabla u^T) : (\nabla v + \nabla v^T) - \int_{\Omega} p \operatorname{div}(v) \\ \quad = \int_{\Omega} \rho g \cdot v + \frac{1}{\mu} \int_{\Omega} (\operatorname{rot} B \times B) \cdot v, \\ \int_{\Omega} q \operatorname{div}(u) = 0, \\ \frac{d}{dt} \int_{\Omega} B \cdot C - \int_{\Omega} w \cdot \nabla B \cdot C - \int_{\Omega} \operatorname{div}(w) B \cdot C \\ \quad + \int_{\Omega} \frac{1}{\mu\sigma} \operatorname{rot} B \cdot \operatorname{rot} C + \int_{\Omega} \alpha \operatorname{div} B \operatorname{div} C = \int_{\Omega} (u \times B) \cdot \operatorname{rot} C. \end{array} \right. \quad (112)$$

Bien sûr, $\hat{\mathcal{A}}_t$ n'est pas uniquement déterminé par la condition (111) : on retrouve là le caractère arbitraire de la méthode ALE. La fonction $\hat{\mathcal{A}}_t$ sera plus précisément définie dans la section 3.2.2.

Cette formulation faible est obtenue classiquement en multipliant les équations (99) par les fonctions tests et en intégrant par parties. On utilise également la formule de dérivation suivante :

Lemme 24 *Pour toute fonction ψ régulière (fonction de (t, x)) et toute fonction régulière ϕ telle que $\hat{\phi}$ (définie par $\hat{\phi}(t, \hat{x}) = \phi(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x}))$) est indépendant du temps, alors :*

$$\begin{aligned} & \frac{d}{dt} \int_{\Omega} \psi(t, x) \phi(t, x) dx \\ &= \int_{\Omega} \left(\phi(t, x) \frac{\partial \psi}{\partial t}(t, x) + \phi(t, x) w(t, x) \cdot \nabla \psi(t, x) + \phi(t, x) \operatorname{div}(w(t, x)) \psi(t, x) \right) dx, \end{aligned} \quad (113)$$

ce qui introduit les termes dépendants de w liés au fait qu'on utilise un maillage (*i.e.* ici des fonctions tests) mobile. Le terme $\int_{\Omega_{n+1}} \alpha \operatorname{div} B \operatorname{div} C$ où α est un paramètre positif permet d'imposer que la condition de divergence nulle $\operatorname{div} B = 0$ se propage en temps. On renvoie à la section 5.1.1 dans [TL39] pour plus de détails.

Un point important à remarquer est que, en supposant des conditions aux limites homogènes sur u et B , on peut écrire une estimée d'énergie pour les solutions du problème (111)–(112) (en prenant $(v, C, q) = (u, B, p)$) de la forme :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \int_{\Omega} \rho |u|^2 + \frac{1}{2\mu} \int_{\Omega} |B|^2 + \int_{\Omega} \rho g z \right) + \int_{\Omega} \frac{\eta}{2} |\nabla u + \nabla u^T|^2 + \int_{\Omega} \frac{1}{\mu^2 \sigma} |\operatorname{rot} B|^2 = 0 \quad (114)$$

en utilisant l'identité : $(\operatorname{rot} B \times B) \cdot u = -(u \times B) \cdot \operatorname{rot} B$ (compensation entre les courants induits et la force de Lorentz). Nous reviendrons ci-dessous sur cette estimée, en cherchant des équivalents discrets à (114) pour les schémas numériques.

3.2.2 Discrétisation de la formulation faible

La discrétisation est basée sur une méthode d'éléments finis pour la formulation variationnelle (112) et une discrétisation en temps implicite permettant d'avoir de bonnes propriétés de stabilité du schéma.

Le domaine $\bar{\Omega}^n = \bar{\Omega}_1^n \cup \bar{\Omega}_2^n$ au n -ième pas de temps, (où Ω_i^n désigne une approximation du domaine occupé par le fluide i au temps t_n), joue le rôle du domaine de référence $\bar{\Omega} = \bar{\Omega}_1 \cup \bar{\Omega}_2$ introduit à la section précédente, sur l'intervalle de temps (t_n, t_{n+1}) . On suppose le pas de temps δt constant ($t_n = n\delta t$).

Etant donné le maillage $\mathcal{M}^n = \mathcal{M}_1^n \cup \mathcal{M}_2^n$ du domaine $\bar{\Omega}^n = \bar{\Omega}_1^n \cup \bar{\Omega}_2^n$ et le couple (u^n, B^n) (approximation de $(u, B)(t_n, \cdot)$), on cherche à calculer (u^{n+1}, B^{n+1}) . Supposons pour le moment qu'on dispose de la vitesse du domaine w^n au temps t_n . On introduit l'application

$$\mathcal{A}_{n,n+1} : \begin{cases} (\Omega_i^n)_{i=1,2} & \rightarrow (\Omega_i^{n+1})_{i=1,2} \\ y & \mapsto x = y + \delta t w^n(y) \end{cases}, \quad (115)$$

qui est une approximation de $\hat{\mathcal{A}}_{t_{n+1}} \circ \hat{\mathcal{A}}_{t_n}^{-1}$. Cette application définit (le maillage et donc) le domaine occupé par chacun des fluides à l'instant t_{n+1} : $\Omega_i^{n+1} = \mathcal{A}_{n,n+1}(\Omega_i^n)$, pour $i = 1, 2$.

Pour la discrétisation en espace, les espaces d'éléments finis sont transportés par $\mathcal{A}_{n,n+1}$. Si on se donne les espaces d'éléments finis à l'instant t_n par :

$$V_{h,n} = W_{h,n} \subset \mathbb{H}_n^1(\Omega), \quad M_{h,n} \subset L_0^2(\Omega),$$

les espaces d'éléments finis à l'instant t_{n+1} sont définis, de manière consistante avec (109)–(110), par :

$$V_{h,n+1} = W_{h,n} = \{v(t_{n+1}, \cdot) : \Omega \rightarrow \mathbb{R}^d, v(t_{n+1}, x) = v(t_n, \mathcal{A}_{n,n+1}^{-1}(x)), v(t_n, \cdot) \in V_{h,n}\},$$

$$M_{h,n+1} = \{q(t_{n+1}, \cdot) : \Omega \rightarrow \mathbb{R}, q(t_{n+1}, x) = q(t_n, \mathcal{A}_{n,n+1}^{-1}(x)), q(t_n, \cdot) \in M_{h,n}\}.$$

On utilise ensuite la discrétisation suivante de (112) : on suppose connu $(u^n, B^n) \in V_{h,n}$, $(\Omega_i^n)_{i=1,2}$ et w^n (et donc $(\Omega_i^{n+1})_{i=1,2}$) ; on calcule $(u^{n+1}, B^{n+1}, p^{n+1}) \in V_{h,n+1} \times W_{h,n+1} \times M_{h,n+1}$ tel que, pour tout $(v(t_n, \cdot), C(t_n, \cdot), q(t_n, \cdot)) \in V_{h,n} \times W_{h,n} \times M_{h,n}$,

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\delta t} \int_{\Omega^{n+1}} \rho u^{n+1} \cdot v + \int_{\Omega^{n+1}} \rho (u^n - w^n) \cdot \nabla u^{n+1} \cdot v - \int_{\Omega^{n+1}} \operatorname{div}(w^n) \rho u^{n+1} \cdot v \\ \quad + \int_{\Omega^{n+1}} \frac{\eta}{2} (\nabla u^{n+1} + (\nabla u^{n+1})^T) : (\nabla v + \nabla v^T) - \int_{\Omega^{n+1}} p^{n+1} \operatorname{div}(v) \\ \quad + \int_{\Omega^{n+1}} \frac{\rho}{2} \operatorname{div}(u^n) u^{n+1} \cdot v + \frac{\delta \rho}{2} \int_{\Sigma^{n+1}} (u^n - w^n) \cdot n_{\Sigma^{n+1}} u^{n+1} \cdot v \, d\sigma_{\Sigma^{n+1}} \\ \quad = \frac{1}{\delta t} \int_{\Omega^n} \rho u^n \cdot v + \int_{\Omega^{n+1}} \rho g \cdot v + \frac{1}{\mu} \int_{\Omega^{n+1}} (\operatorname{rot} B^{n+1} \times B^n) \cdot v, \\ \int_{\Omega^{n+1}} q \operatorname{div}(u^{n+1}) = 0, \\ \frac{1}{\delta t} \int_{\Omega^{n+1}} B^{n+1} \cdot C - \int_{\Omega^{n+1}} w^n \cdot \nabla B^{n+1} \cdot C - \int_{\Omega^{n+1}} \operatorname{div}(w^n) B^{n+1} \cdot C \\ \quad + \int_{\Omega^{n+1}} \frac{1}{\mu \sigma} \operatorname{rot} B^{n+1} \cdot \operatorname{rot} C + \int_{\Omega^{n+1}} \alpha \operatorname{div} B^{n+1} \operatorname{div} C \\ \quad = \frac{1}{\delta t} \int_{\Omega^n} B^n \cdot C + \int_{\Omega^{n+1}} (u^{n+1} \times B^n) \cdot \operatorname{rot} C. \end{array} \right. \quad (116)$$

Noter que l'exposant n dans le domaine d'intégration Ω^n indique que l'on considère le domaine au temps t^n . Ainsi, une intégrale sur le domaine Ω^{n+1} implique que les fonctions tests ou les fonctions ρ , η et σ sont prises au temps t_{n+1} . Par exemple,

$$\int_{\Omega^{n+1}} \frac{\rho}{2} \operatorname{div}(u^n) u^{n+1} \cdot v = \sum_{i=1}^2 \frac{\rho_i}{2} \int_{\Omega_i^{n+1}} \operatorname{div}(u^n \circ \mathcal{A}_{n,n+1}^{-1}) u^{n+1} \cdot v(t_{n+1}, \cdot).$$

Quelques remarques sur cette formulation variationnelle :

- Dans la troisième ligne de (116) apparaissent deux termes fortement consistants qui sont nécessaires pour avoir de bonnes propriétés de stabilité du schéma (cf. Section III.5 in [96]). On a utilisé la notation :

$$\delta \rho = \rho_2 - \rho_1. \quad (117)$$

- Le schéma numérique est un schéma couplé sur les inconnues $(u^{n+1}, p^{n+1}, B^{n+1})$. Ce couplage est nécessaire pour montrer la stabilité du schéma numérique en reproduisant au niveau discret la compensation entre courants induits et force de Lorentz. On renvoie au chapitre 2 dans [TL39] pour une comparaison de l'algorithme couplé et de l'algorithme ségrégué (calcul de (u^{n+1}, p^{n+1}) puis de B^{n+1}).
- Les espaces d'éléments finis $V_{h,n}$ et $M_{h,n}$ pour la vitesse et la pression doivent vérifier une condition inf-sup pour que le problème soit bien posé. En pratique, on utilise également des méthodes de stabilisation (du type *Galerkin Least Square*) pour s'affranchir de cette difficulté et permettre d'atteindre des nombres de Reynolds plus grands. On renvoie au chapitre 2 dans [TL39] pour plus de détails.

Pour terminer la présentation du schéma numérique, il reste à préciser comment la vitesse w^n est calculée, de manière à satisfaire (107). Nous utilisons une vitesse w^n qui est seulement verticale ($w^n = (0, 0, w_z^n)$) et nous résolvons un problème de Poisson pour étendre la valeur de w_z^n connue sur l'interface (et sur les bords des domaines non verticaux) à tout le domaine. L'algorithme complet s'écrit donc : supposons que $(\Omega_i^n)_{i=1,2}$ et (u^n, B^n, p^n) sont connus. Alors w^n , $(\Omega_i^{n+1})_{i=1,2}$ et $(u^{n+1}, B^{n+1}, p^{n+1})$ sont calculés en suivant l'algorithme :

- (i) Calculer les termes définis sur Ω^n dans (116).
- (ii) Calculer $w^n = (0, 0, w_z^n)$ en résolvant

$$\begin{cases} -\Delta w_z^n &= 0, & \text{sur } \Omega_i^n, i = 1, 2, \\ \frac{\partial w_z^n}{\partial n} &= 0, & \text{sur les parties verticales de } \partial\Omega_i^n, \\ w_z^n &= \frac{u^n \cdot n_{\partial\Omega_i^n}}{n_{\partial\Omega_i^n, z}}, & \text{sur le reste de } \partial\Omega_i^n, \end{cases} \quad (118)$$

où $n_{\partial\Omega_i} = (n_{\partial\Omega_i, x}, n_{\partial\Omega_i, y}, n_{\partial\Omega_i, z})$.

- (iii) Bouger les noeuds du maillage selon $\mathcal{A}_{n, n+1}$ (cf. (115)).
- (iv) Calculer les termes définis sur Ω^{n+1} dans (116).
- (v) Résoudre le système linéaire correspondant à (116) pour obtenir $(u^{n+1}, B^{n+1}, p^{n+1})$.

Dans l'étape (ii), l'implémentation des conditions aux limites de Dirichlet sur w_z^n est simplifiée en utilisant une définition des normales n_{Σ^n} aux noeuds de la surface discrétisée Σ^n . Une telle définition n'est pas triviale, car Σ^n est seulement régulière par morceaux, et les noeuds sont justement les points singuliers de Σ^n . En pratique, dans le prolongement de [42], on calcule des normales n_{Σ^n} à chaque noeud de l'interface en imposant que la formule de Stokes $\int_{\Omega_1^n} \operatorname{div} u = \int_{\Sigma^n} u \cdot n_{\Sigma^n}$ soit satisfaite au niveau discret. On renvoie à la Section 5.1.3.2 de [TL39] ou à [TL02] pour plus de détails.

3.2.3 Quelques propriétés

On donne dans cette section quelques bonnes propriétés du schéma numérique présenté ci-dessus (cf. [TL02]).

Une propriété importante est que le schéma satisfait la *Geometric Conservation Law* (GCL). Expliquons cela. Au niveau continu, on vérifie que si ϕ est une fonction test telle que $\hat{\phi}$ (défini par $\hat{\phi}(t, \hat{x}) = \phi(t, \hat{\mathcal{A}}_t(\hat{x}))$) est indépendante du temps, alors (prendre $\psi = 1$ dans (113)) :

$$\frac{d}{dt} \int_{\Omega} \phi(t, x) dx = \int_{\Omega} \phi(t, x) \operatorname{div} w(t, x) dx. \quad (119)$$

La GCL est satisfaite s'il existe un équivalent discret à (119) (cf. [76, 66, 48, 45] pour des définitions plus ou moins similaires) :

Lemme 25 (GCL) *On suppose que la vitesse de déplacement du domaine est purement verticale : $w^n = (0, 0, w_z^n)$. Soit ϕ une fonction définie sur Ω_i^{n+1} , pour $i = 1$ or 2 . Alors le schéma numérique ALE satisfait la GCL au sens suivant :*

$$\int_{\Omega_i^{n+1}} \phi(x) dx - \int_{\Omega_i^n} \phi \circ \mathcal{A}_{n, n+1}(y) dy = \delta t \int_{\Omega_i^n} \phi \circ \mathcal{A}_{n, n+1}(y) \operatorname{div}_y w^n(y) dy \quad (120)$$

$$= \delta t \int_{\Omega_i^{n+1}} \phi(x) \operatorname{div}_x \left(w^n \circ \mathcal{A}_{n, n+1}^{-1}(x) \right) dx. \quad (121)$$

Deux conséquences importantes de ce résultat sur le schéma numérique sont :

- la masse des fluides est conservée exactement ;
- le schéma est stable en norme d'énergie (en l'absence de gravité).

On précise cela dans les deux propositions suivantes :

Proposition 26 *On suppose que (i) les normales discrètes à l'interface sont calculées de telle sorte que la formule de Stokes $\int_{\Omega_1^n} \operatorname{div} u = \int_{\Sigma^n} u \cdot n_{\Sigma^n}$ soit valable au niveau discret, (ii) $\int_{\Omega_1^n} \operatorname{div}(u^n) = 0$ et (iii) la GCL est satisfaite. Alors, pour $i = 1, 2$,*

$$|\Omega_i^n| = |\Omega_i^{n+1}|, \quad (122)$$

où $|\Omega_i^n|$ désigne la mesure de Lebesgue du domaine Ω_i^n .

Noter que l'hypothèse (ii) revient à dire que la fonction indicatrice du domaine Ω_1^n est dans l'espace en pression. C'est le cas pour des éléments finis du type Q2-P1_{disc}, par exemple.

Proposition 27 *On suppose que $g = 0$ (pas de gravité) et que les conditions aux limites sur u et B sont homogènes. Alors (comparer avec l'estimée d'énergie au niveau continu (114), avec $g = 0$) :*

$$\begin{aligned} & \frac{1}{\delta t} (E^{n+1} - E^n) + \int_{\Omega^{n+1}} \frac{\eta}{2} |\nabla u^{n+1} + (\nabla u^{n+1})^T|^2 + \int_{\Omega^{n+1}} \frac{1}{\mu^2 \sigma} |\text{rot} B^{n+1}|^2 \\ &= - \left(\int_{\Omega^n} \frac{\rho}{2\delta t} |u^{n+1} \circ \mathcal{A}_{n,n+1} - u^n|^2 + \int_{\Omega^n} \frac{1}{2\mu\delta t} |B^{n+1} \circ \mathcal{A}_{n,n+1} - B^n|^2 \right), \end{aligned} \quad (123)$$

où E^n désigne la somme de l'énergie cinétique et magnétique à l'instant n :

$$E^n = \int_{\Omega^n} \frac{\rho}{2} |u^n|^2 + \int_{\Omega^n} \frac{1}{2\mu} |B^n|^2.$$

Dans l'estimée (123), le second membre est négatif et d'ordre δt . Ce résultat montre que le schéma numérique est stable en norme d'énergie.

Les deux propriétés (122) et (123) sont faciles à satisfaire sur un maillage fixe, mais nécessitent des schémas particuliers sur un maillage mobile. Il est en particulier intéressant d'obtenir une stabilité dans la norme de l'énergie (inconditionnelle, en l'absence de gravité) en ne résolvant qu'un système linéaire par pas de temps.

3.3 Un cas test important pour les applications : le *rolling*

Comme nous l'avons mentionné ci-dessus, l'étude de la stabilité des cuves d'électrolyse de l'aluminium est un sujet d'investigation depuis de nombreuses années pour des chercheurs en mécanique des fluides, magnétohydrodynamique, et mathématiques appliquées. Un des phénomènes d'instabilité qui semble faire consensus entre toute les communautés est le *rolling*. Il s'agit d'un mouvement d'oscillation périodique de l'interface, qui est observé en pratique sur les cuves, et qui peut dans certaines configurations s'amplifier avec le temps et déstabiliser le processus industriel.

Le mécanisme physique qui est généralement proposé pour expliquer le *rolling* est le suivant (cf. [88, 19, 31], et Figure 5). On suppose que la cuve est parcourue par un courant électrique, et que le champ magnétique ambiant a une composante verticale non nulle. Une perturbation initiale provoque une inclinaison de l'interface séparant l'aluminium du bain cryolitique. Cette perturbation induit une redistribution des courants dans la cuve, due au fait que le courant passe préférentiellement dans la zone où l'interface est la plus proche du plan anodique (puisque le bain est très résistant par rapport à l'aluminium). Les courants se redistribuent ensuite dans l'aluminium, et ceci induit des courants horizontaux. Ces courants horizontaux interagissent alors avec la composante verticale du champ magnétique pour créer une force de Lorentz horizontale, impliquant une rotation de l'interface. On renvoie à la Figure 5 pour une illustration du phénomène.

Ce mécanisme a été très étudié. Des analyses spectrales basées sur des linéarisations des équations (99) autour d'un état stationnaire, et des approximations de type eaux peu profondes ont conduit à des critères pour s'assurer que l'amplitude des oscillations n'augmente pas avec le temps (critères de stabilité) (cf. [88, 19, 31] et Section 6.2 dans [TL39] pour une revue de la bibliographie sur ce sujet).

Dans [TL02, TL24, TL30], nous avons pu simuler le rolling avec le schéma numérique présenté ci-dessus discrétisant le système d'équations (99). Ceci a permis notamment de

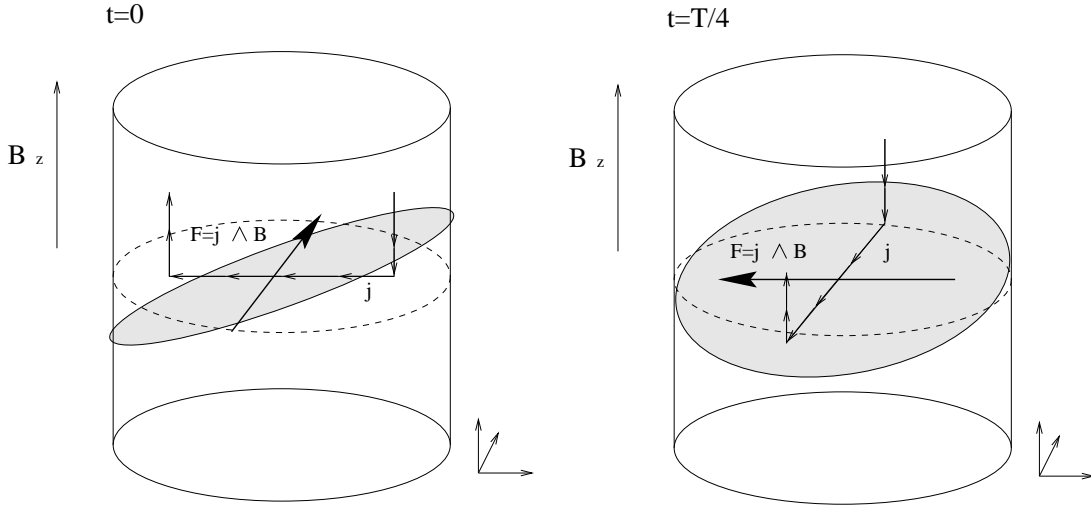


FIG. 5 – Le mécanisme du *rolling* représenté sur une cuve cylindrique. On note j la perturbation du courant due à l’inclinaison de l’interface (en grisé).

confirmer le mécanisme physique proposé pour expliquer le rolling (interaction du champ magnétique verticale avec des courants horizontaux dus aux mouvements de l’interface). Nous avons comparé les résultats avec ceux obtenus par des approches linéaires [88, 19, 31]. Parmi les accords entre les deux approches, nous avons observés :

- L’analyse spectrale du signal temporel de la hauteur d’un point de l’interface montre que les fréquences d’oscillation sont proches de celles prédites par l’analyse de stabilité linéaire.
- Quand la valeur de la composante verticale du champ magnétique augmente, on observe *via* cette analyse spectrale que certains modes stables collisionnent, deviennent instables, puis se stabilisent à nouveau. Le même phénomène est observé sur les modèles linéarisés.

Ceci dit, les seuils d’instabilités pour le modèle non-linéaire (99), par exemple sur la valeur du champ magnétique verticale, sont typiquement plus élevés que pour les modèles linéaires. Nous pensons que le pessimisme des modèles linéaires vis-à-vis de la stabilité des cuves est dû aux hypothèses sous-jacentes aux modèles linéarisés (cf. Section 6.2 dans [TL39]) qui négligent plusieurs phénomènes dissipatifs (comme la viscosité des fluides, par exemple). En particulier, pour utiliser les modèles linéarisés en pratique, les ingénieurs sont amenés à introduire un seuil sur les parties imaginaires des valeurs propres, au-delà duquel la cuve est considérée comme instable. Déterminer ce seuil est évidemment très délicat. Avec un modèle non-linéaire tel que (99), nous pouvons espérer obtenir de meilleurs résultats prédictifs, avec moins de paramètres *ad hoc*.

3.4 Le problème de la ligne de contact

L’étude du problème industriel nous a amené à considérer un problème de modélisation fondamental. Il s’agit de modéliser le mouvement des points du bord de l’interface (qui sont en contact avec la paroi et les deux fluides), ce qui est relié à un choix correct des conditions aux limites sur la vitesse (puisque la vitesse normale de l’interface est égale à la vitesse normale du fluide). En effet, choisir une condition aux limites de collement sur $\partial\Omega$ ($u = 0$) implique de ne pas bouger les points du bords de l’interface, ce qui paraît absurde d’un point de vue de modélisation. A l’opposé, choisir une condition de glissement pure sur $\partial\Omega$

($u \cdot n_{\partial\Omega} = 0$ et $\sigma n_{\partial\Omega} \cdot \tau = 0$ où τ désigne n'importe quel vecteur tangent à $\partial\Omega$ et

$$\sigma = \eta(\nabla u + \nabla u^T) \quad (124)$$

désigne dans cette section la partie visqueuse du tenseur des contraintes) ne semble pas approprié non plus car dans ce cas, le fluide ne voit pas les éventuelles mouvements tangentiels du bord de Ω , ce qui n'est pas physique (penser au cas test de la cavité entraînée). Ce problème de modélisation s'appelle le problème de la ligne de contact (*moving contact line problem* cf. [83, 89]).

Cette difficulté est bien sûr d'origine purement hydrodynamique, et c'est pourquoi nous considérons dans cette section le système d'équations (99) avec $B = 0$. Nous verrons dans la suite que le problème de la ligne de contact est relié à la tension de surface, et nous considérons donc le système d'équations :

$$\begin{cases} \frac{\partial(\rho u)}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho u \otimes u) - \operatorname{div}(\eta(\nabla u + \nabla u^T)) = -\nabla p + \gamma H n_\Sigma \delta_\Sigma + \rho g, \\ \operatorname{div}(u) = 0, \\ \frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho u) = 0, \end{cases} \quad (125)$$

où γ désigne le paramètre de tension de surface entre les deux fluides, H la courbure moyenne de l'interface Σ comptée positivement selon n_Σ , et δ_Σ est défini par : pour toute fonction test régulière ψ :

$$\langle \delta_\Sigma, \psi \rangle = \int_\Sigma \psi d\sigma_\Sigma, \quad (126)$$

où σ_Σ désigne la mesure de Lebesgue (mesure surfacique) sur Σ . Le terme $\gamma H n_\Sigma \delta_\Sigma$ au membre de droite de (125) modélise les effets de tension de surface.

Dans la section 3.4.1, nous présentons la *Generalized Navier Boundary Condition* (GNBC) qui a été introduite dans [82] pour modéliser le mouvement de la ligne de contact. Nous expliquons pourquoi la formulation variationnelle ALE présentée ci-dessus est bien adaptée pour implémenter cette condition aux limites. Dans la section 3.4.2, nous illustrons sur un cas test proposé dans [82] l'intérêt de la GNBC. Enfin, dans la section 3.4.3, nous dérivons des estimées d'énergie sur le problème continu pour cette condition aux limites, et essayons de prouver des estimées similaires pour le problème discrétisé. Ceci nous amène à introduire une extension de la *Geometric Conservation Law* (cf. le Lemme 25) pour des intégrales de surface.

Cette section est basée sur les travaux [TL31, TL21].

3.4.1 La condition aux limites de Navier généralisée (GNBC)

En s'appuyant sur des simulations de dynamique moléculaire, les auteurs de [82] proposent une condition aux limites pour le vecteur vitesse u sur $\partial\Omega$ permettant de modéliser le mouvement de la ligne de contact. Pour écrire cette condition aux limites, nous devons introduire quelques vecteurs définis sur le bord $\partial\Sigma$ de l'interface (cf. Figure 6) : $t_{\partial\Sigma} = n_\Sigma \times n_{\partial\Omega}$ est un vecteur tangent à $\partial\Sigma$, $m = t_{\partial\Sigma} \times n_\Sigma$ et $t_{\partial\Omega} = n_{\partial\Omega} \times t_{\partial\Sigma}$. On note θ l'angle de contact entre l'interface Σ et le bord $\partial\Omega$, mesuré dans le fluide 1 par convention. Noter que $\cos(\theta) = m \cdot t_{\partial\Omega}$. Quand les fluides sont au repos, $\theta = \theta_s$ (angle de contact statique).

La condition aux limites de Navier généralisée (GNBC) s'écrit :

$$(u - u_b) \cdot n_{\partial\Omega} = 0, \quad (127)$$

$$\forall \tau \text{ tangent à } \partial\Omega, \beta \left((u - u^b) \cdot \tau + \sigma n_{\partial\Omega} \cdot \tau + \gamma (m \cdot t_{\partial\Omega} - \cos(\theta_s)) t_{\partial\Omega} \cdot \tau \delta_{\partial\Sigma} \right) = 0, \quad (128)$$

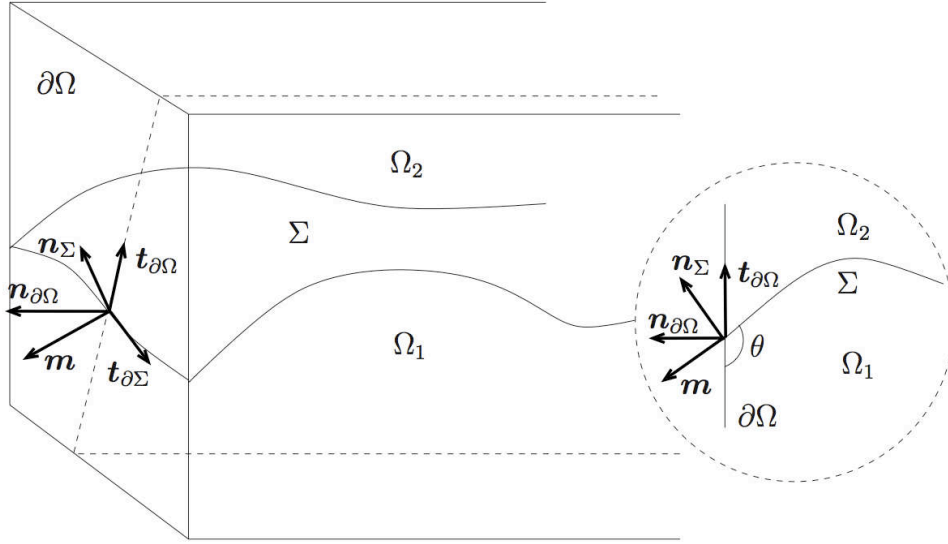


FIG. 6 – Le domaine Ω et plusieurs vecteurs. L'image en dimension 2 (dans le cercle en pointillés) représente des vecteurs contenus dans un plan orthogonal à $t_{\partial\Omega}$.

où σ est défini par (124), β est un paramètre positif et u_b désigne la vitesse du bord de Ω (dans les sections précédentes, nous avons implicitement supposé $u_b = 0$). Dans la suite, pour simplifier, nous supposons que

$$u_b \cdot n_{\partial\Omega} = 0$$

de sorte que les fluides vivent dans un domaine Ω fixe. La première condition (127), qui se réduit donc à $u \cdot n_{\partial\Omega} = 0$, est simplement la condition de non pénétrabilité. La seconde condition (128) est une généralisation de la condition aux limites de Navier (que l'on retrouve dans le cas $\gamma = 0$). Noter que le terme supplémentaire $\gamma(m \cdot t_{\partial\Omega} - \cos(\theta_s))t_{\partial\Omega} \cdot \tau \delta_{\partial\Sigma}$ mesure l'écart entre l'angle de contact dynamique et l'angle de contact statique. Ce terme a pour support le bord de l'interface, puisque par définition (de manière consistante avec (126)) : pour toute fonction test régulière ψ ,

$$\langle \delta_{\partial\Sigma}, \psi \rangle = \int_{\Sigma} \psi d\lambda_{\partial\Sigma},$$

où $\lambda_{\partial\Sigma}$ désigne la mesure de Lebesgue (mesure linéique) sur $\partial\Sigma$. L'estimée d'énergie au niveau continu présentée à la section 3.4.3 ci-dessous donnera une interprétation physique de la GNBC en terme de tension de surface entre les fluides et la paroi (cf. remarque 30).

Il est intéressant de noter qu'il est très facile d'implémenter le terme de tension de surface et la GNBC dans la formulation ALE présentée dans les sections 3.2.1 et 3.2.2. La prise en compte de ces nouveaux termes dans la formulation ALE est basée sur le théorème de la divergence surfacique (cf. [3], Equation (3.8)) : pour toute fonction test régulière $\Phi : \Sigma \rightarrow \mathbb{R}^d$,

$$-\int_{\Sigma} H\Phi \cdot n_{\Sigma} d\sigma_{\Sigma} = \int_{\Sigma} \text{tr}(\nabla_{\Sigma}\Phi) d\sigma_{\Sigma} - \int_{\partial\Sigma} \Phi \cdot m d\lambda_{\partial\Sigma}, \quad (129)$$

où ∇_{Σ} désigne le gradient surfacique. En utilisant (129), on obtient la formulation faible suivante du problème (125)–(127)–(128) (comparer avec (112)) : trouver $(u, p) \in V_T \times M_T$

tels que pour tout $(v, q) \in V_T \times M_T$,

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} \int_{\Omega} \rho u \cdot v + \int_{\Omega} \rho(u - w) \cdot \nabla u \cdot v - \int_{\Omega} \operatorname{div}(w) \rho u \cdot v \\ + \int_{\Omega} \frac{\eta}{2} (\nabla u + \nabla u^T) : (\nabla v + \nabla v^T) - \int_{\Omega} p \operatorname{div}(v) \\ = -\gamma \int_{\Sigma} \operatorname{tr}(\nabla_{\Sigma} v) d\sigma_{\Sigma} - \beta \int_{\partial\Omega} (u - u^b) \cdot v \\ + \gamma \int_{\partial\Sigma} \cos(\theta_s) t_{\partial\Omega} \cdot v d\lambda_{\partial\Sigma} + \int_{\Omega} \rho g \cdot v, \\ \int_{\Omega} q \operatorname{div}(u) = 0. \end{array} \right. \quad (130)$$

On renvoie à la section 3.2 de [TL21] pour les détails.

La discrétisation en temps, et le calcul de la vitesse du déplacement du maillage se font de la même façon que présenté ci-dessus (cf. Section 3.2.2).

3.4.2 Simulations numériques avec la GNBC

Pour illustrer l'intérêt de la GNBC, nous considérons un cas-test proposé dans [82]. Il s'agit d'un problème en dimension 2, périodique dans la direction horizontale (cf. Figure 7). Deux fluides sont confinés entre deux plaques horizontales, et initialement au repos, les interfaces les séparant étant verticales. A $t = 0$, les deux plaques sont animées avec une vitesse horizontale constante, positive pour la plaque supérieure et négative pour la plaque inférieure. On observe alors l'évolution de la forme de l'interface entre les deux fluides, et son état stationnaire, dans deux cas : un cas symétrique, pour lequel $\beta_1 = \beta_2 = 1.5$ et $\theta_s = \pi/2$, et un cas asymétrique pour lequel $\beta_1 = 1.5$, $\beta_2 = 0.591$ et $\theta_s = \arccos(0.38)$ (cf. [TL21] et [82] pour le détail des valeurs des paramètres).

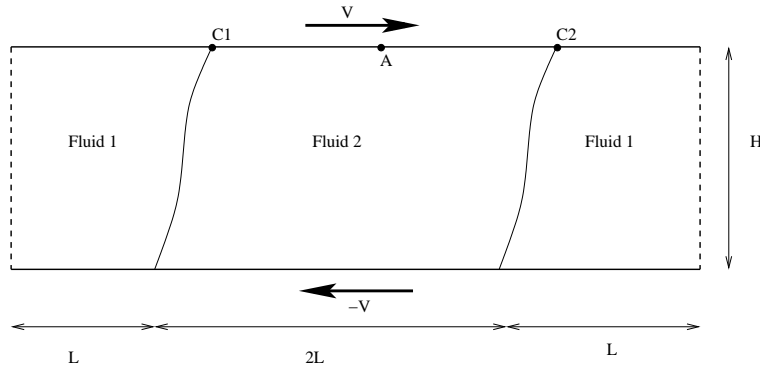


FIG. 7 – Géométrie pour la simulation de deux fluides entre deux plaques. Le domaine est périodique dans la direction horizontale.

Sur la Figure 8, on représente l'évolution du champ de vitesse et de la forme de l'interface au cours du temps. Sur la Figure 9, on montre comment la GNBC permet pour les points situés près du bord de passer d'une situation de glissement pur (pour les points du bord C1 et C2 situés sur la ligne de contact, cf. Figure 7) à une situation s'approchant du collement (pour les points du bord loin de la ligne de contact comme le point A sur la Figure 7). Enfin, sur la Figure 10, on représente les interfaces obtenues à l'état stationnaire, dans les cas symétrique et asymétrique. Cette figure est en excellent accord avec les résultats obtenus par T.Z. Qian *et al.* (cf. la Figure 20 dans [83]). Noter que dans les

travaux [82, 83], les auteurs ont également comparé ces résultats à des simulations de dynamique moléculaire, et obtenu de très bonnes concordances. Il serait impossible d'obtenir ces résultats avec des conditions aux limites de glissement ou de collement.

Remarque 28 *On vérifie numériquement que sans tension de surface (i.e. si $\gamma = 0$), on n'obtient pas de solution stationnaire. En revanche, une solution stationnaire est observée si on remplace la condition aux limites GNBC (128) par une condition aux limites de Navier simple (dans laquelle le paramètre θ_s n'apparaît plus) : $\forall \tau$ tangent à $\partial\Omega$,*

$$\beta (u - u^b) \cdot \tau + \sigma n_{\partial\Omega} \cdot \tau = 0,$$

en conservant le terme de tension de surface dans (125) ($\gamma > 0$). Ceci revient à considérer la formulation variationnelle (130) avec $\gamma \int_{\partial\Sigma} t_{\partial\Omega} \cdot m t_{\partial\Omega} \cdot v d\lambda_{\partial\Sigma}$ à la place de $\gamma \int_{\partial\Sigma} \cos(\theta_s) t_{\partial\Omega} \cdot v d\lambda_{\partial\Sigma}$ (l'angle de contact dynamique remplace l'angle de contact statique). Le problème avec cette condition aux limites est qu'elle ne permet pas de reproduire les observations expérimentales et les simulations par dynamique moléculaire qui montrent qu'il faut introduire le paramètre θ_s (angle de contact statique) pour expliquer la forme de l'interface à l'état stationnaire.

3.4.3 Estimées d'énergie et stabilité des schémas

Dans cette section, nous proposons d'étendre les résultats des sections précédentes sur les estimées d'énergie (cf. (114) et (123)) en prenant en compte les effets de tensions de surface, la GNBC, et la gravité.

Au niveau continu, on peut montrer le résultat suivant (comparer avec (114)) :

Proposition 29 *Un couple (u, p) solution de (130) satisfait l'estimée d'énergie suivante :*

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \left(\int_{\Omega} \rho |u|^2 + \int_{\Omega} \rho g z + \gamma |\Sigma(t)| \right) + \int_{\Omega} \frac{\eta}{2} |\nabla u + \nabla u^T|^2 + \beta \int_{\partial\Omega} u \cdot (u - u_b) \\ = \gamma \int_{\partial\Sigma} \cos(\theta_s) t_{\partial\Omega} \cdot u d\lambda_{\partial\Sigma}, \end{aligned} \quad (131)$$

où $|\Sigma(t)|$ désigne la mesure de Lebesgue de l'interface $\Sigma(t)$.

La preuve de cette proposition est basée sur les identités suivantes :

$$\int_{\Sigma} \text{tr}(\nabla_{\Sigma} u) d\sigma_{\Sigma} = \int_{\Sigma} \text{tr}(\nabla_{\Sigma} w) d\sigma_{\Sigma} = \frac{d}{dt} \int_{\Sigma} d\sigma_{\Sigma}. \quad (132)$$

La seconde égalité repose sur des résultats de géométrie différentielle (cf. [37, Equation (4.17) p. 355]). La première égalité est basée sur (129) et sur le fait que $u \cdot n_{\Sigma} = w \cdot n_{\Sigma}$, et donc $u \cdot m = w \cdot m$ (puisque les composantes normales à $\partial\Omega$ de u et w sur $\partial\Sigma$ sont nulles).

Remarque 30 *Le terme dans le membre de droite de (131) peut être interprété comme la dérivée d'une "énergie de mouillage" des fluides par rapport au bord. En effet, soit $\Sigma_i = \partial\Omega_i \setminus \Sigma$ la partie de $\partial\Omega$ mouillée par le fluide i (où $i = 1, 2$). Alors, en utilisant (132) pour les surfaces $\Sigma_i(t)$, et la relation de Young :*

$$\gamma_{1,w} - \gamma_{2,w} + \gamma \cos(\theta_s) = 0,$$

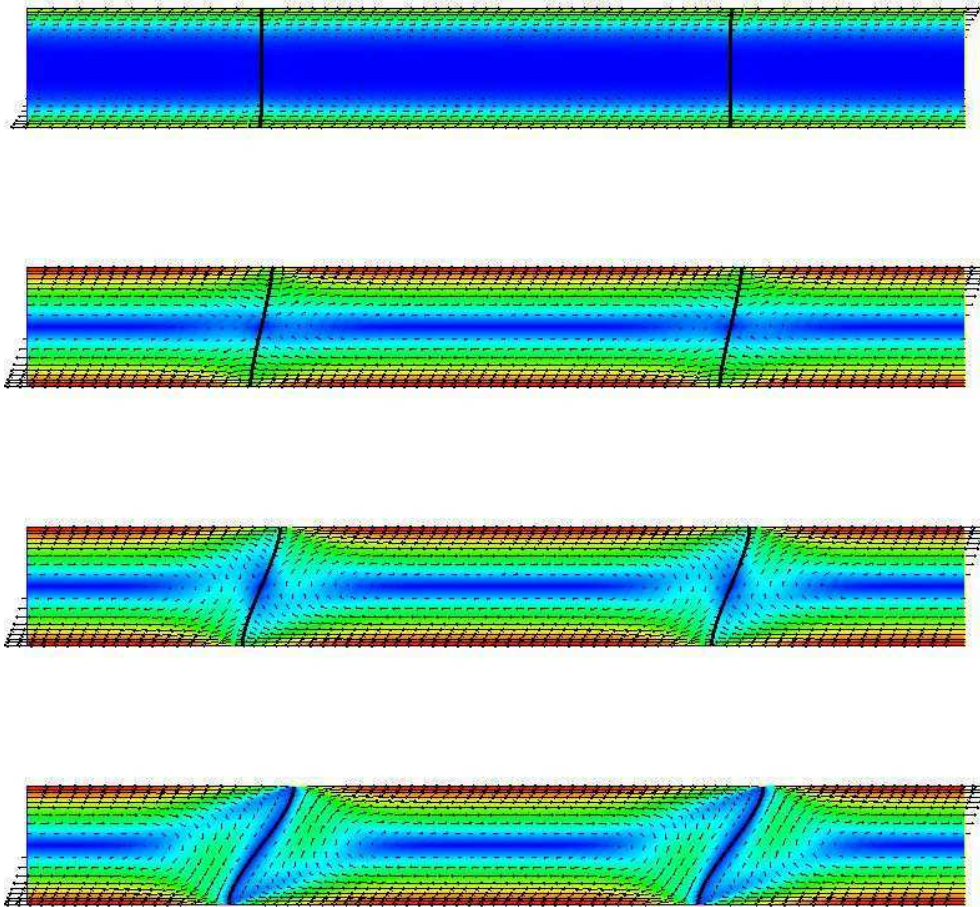


FIG. 8 – Champ de vitesse aux temps $t = 1$, $t = 10$, $t = 20$ et $t = 100$ dans le cas symétrique. La couleur représente la norme du champ de vitesse.

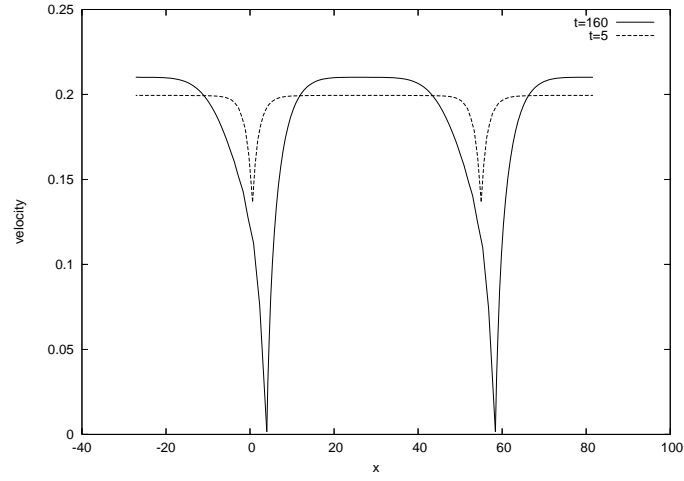


FIG. 9 – Vitesse des fluides au niveau de la plaque supérieure en fonction de l'abscisse x , dans le cas symétrique. A $t = 5$, l'état stationnaire n'est pas encore atteint, puisque les points situés sur la ligne de contact n'ont pas une vitesse nulle. A $t = 160$, les points sur la ligne de contact ont une vitesse nulle, tandis que les points loin de la ligne de contact ont une vitesse d'environ 0.21, à comparer avec la vitesse $v = 0.25$ de la plaque supérieure.

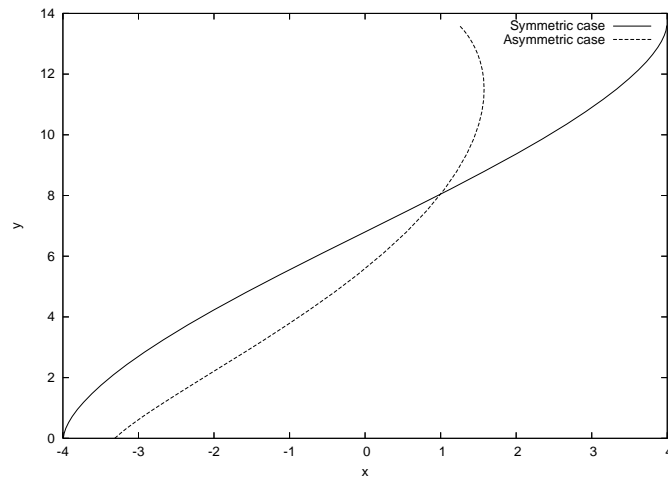


FIG. 10 – Forme des interfaces obtenues à l'état stationnaire, dans les cas symétrique et asymétrique.

où $\gamma_{i,w}$ désigne le paramètre de tension de surface entre le fluide i et le bord, on vérifie que

$$\gamma \int_{\partial \Sigma} \cos(\theta_s) t_{\partial \Omega} \cdot u \, d\lambda_{\partial \Sigma} = - \left(\gamma_{1,w} \frac{d|\Sigma_1(t)|}{dt} + \gamma_{2,w} \frac{d|\Sigma_2(t)|}{dt} \right). \quad (133)$$

La GNBC et le terme de tension de surface s'interprètent donc comme les "forces" associées à l'énergie potentielle $\gamma|\Sigma(t)| + \gamma_{1,w}|\Sigma_1(t)| + \gamma_{2,w}|\Sigma_2(t)|$.

Dans la suite, on ne considère pas le membre de droite de (131) comme la dérivée d'une énergie par simplicité. Il serait possible cependant de dériver une version discrète de (133), comme nous le faisons ci-dessous pour $\frac{d|\Sigma(t)|}{dt}$.

Nous nous proposons maintenant d'établir un équivalent discret à (131) (dans l'esprit de (123), mais en tenant compte de la gravité, de la tension de surface et de la GNBC). Nous avons pour cela besoin du lemme suivant, qui est une loi de conservation géométrique surfacique (SGCL, comparer avec le Lemme 25) :

Lemme 31 (SGCL) *On suppose que la vitesse de déplacement du domaine est purement verticale : $w^n = (0, 0, w_z^n)$. Soit ϕ une fonction définie sur Σ^{n+1} . Alors, si δt est suffisamment petit pour vérifier :*

$$1 + \delta t \operatorname{tr}(\nabla_{\Sigma^n}(w^n)) \geq 0 \quad \text{sur } \Sigma^n, \quad (134)$$

alors le schéma ALE satisfait :

$$\int_{\Sigma^{n+1}} \phi \, d\sigma_{\Sigma^{n+1}} - \int_{\Sigma^n} \phi \circ \mathcal{A}_{n,n+1} \, d\sigma_{\Sigma^n} \geq \delta t \int_{\Sigma^n} \phi \circ \mathcal{A}_{n,n+1} \operatorname{tr}(\nabla_{\Sigma^n}(w^n)) \, d\sigma_{\Sigma^n}. \quad (135)$$

De même, si δt est suffisamment petit pour vérifier

$$1 - \delta t \operatorname{tr}(\nabla_{\Sigma^{n+1}}(w^n \circ \mathcal{A}_{n,n+1}^{-1})) \geq 0 \quad \text{sur } \Sigma^{n+1}, \quad (136)$$

alors le schéma ALE satisfait :

$$\int_{\Sigma^{n+1}} \phi \, d\sigma_{\Sigma^{n+1}} - \int_{\Sigma^n} \phi \circ \mathcal{A}_{n,n+1} \, d\sigma_{\Sigma^n} \leq \delta t \int_{\Sigma^{n+1}} \phi \operatorname{tr}(\nabla_{\Sigma^{n+1}}(w^n \circ \mathcal{A}_{n,n+1}^{-1})) \, d\sigma_{\Sigma^{n+1}}. \quad (137)$$

Dans les deux cas, la différence entre les membres de droite et de gauche des inégalités (135) et (137) est d'ordre δt^2 dans la limite $\delta t \rightarrow 0$.

Ce lemme peut être vu comme un équivalent discret de la relation (132) (dans le cas $\phi = 1$). En comparaison de la GCL (cf. Lemme 25), nous n'obtenons que des inégalités.

En utilisant ce lemme, nous montrons l'estimée d'énergie suivante, version discrète de (131) (qui est une généralisation de (123)) :

Proposition 32 *On suppose que la vitesse de déplacement du domaine est verticale. Alors la solution du schéma ALE satisfait :*

$$\begin{aligned} & \frac{E^{n+1} - E^n}{\delta t} + \frac{W^{n+2} - W^{n+1}}{\delta t} + \gamma \frac{|\Sigma^{n+2}| - |\Sigma^{n+1}|}{\delta t} + \int_{\Omega^{n+1}} |\nabla u^{n+1} + (\nabla u^{n+1})^T|^2 \\ & + \beta(u^{n+1} - u_b, u^{n+1})_{\partial \Omega^{n+1}} = \gamma \int_{\partial \Sigma^{n+1}} \cos(\theta_s) t_{\partial \Omega} \cdot u^{n+1} \, d\lambda_{\partial \Sigma} \\ & - \int_{\Omega^n} \frac{\rho}{2\delta t} |u^{n+1} - u^n|^2 + \epsilon_g^{n+1} + \epsilon_{\gamma,exp}^{n+1} \end{aligned} \quad (138)$$

avec

$$\begin{aligned} E^n &= \int_{\Omega^n} \frac{\rho}{2} |u^n|^2, \\ W^n &= \int_{\Omega^n} \rho g z, \\ \epsilon_g^{n+1} &= -\frac{\delta t}{2} \int_{\Sigma^{n+1}} \delta \rho g (w^{n+1})^2 n_{\Sigma^{n+1}, z} \end{aligned} \quad (139)$$

et

$$\epsilon_{\gamma, exp}^{n+1} = \frac{\gamma}{\delta t} \left(|\Sigma^{n+2}| - |\Sigma^{n+1}| - \delta t \int_{\Sigma^{n+1}} \text{tr}(\nabla_{\Sigma^{n+1}} w^{n+1}) \right). \quad (140)$$

De plus, si le fluide le plus lourd est sous le plus léger, $\epsilon_g^{n+1} \geq 0$, et, pour un pas de temps δt suffisamment petit, $\epsilon_{\gamma, exp}^{n+1} \geq 0$.

Le signe de (140) est une conséquence de la SGCL. Cette proposition montre que de l'énergie est apportée dans le système, par la discrétisation en temps.

Pour obtenir un schéma plus stable, on peut utiliser une version implicite du déplacement du maillage, en remplaçant (118) par

$$\left\{ \begin{array}{ll} -\Delta w_z^n = 0, & \text{sur } \Omega_i^{n+1}, i = 1, 2, \\ \frac{\partial w_z^n}{\partial n} = 0, & \text{sur les parties verticales de } \partial \Omega_i^{n+1}, \\ w_z^n \circ \mathcal{A}_{n, n+1}^{-1} = \frac{u^{n+1} \cdot n_{\partial \Omega_i^{n+1}}}{n_{\partial \Omega_i^{n+1}, z}}, & \text{sur le reste de } \partial \Omega_i^{n+1}. \end{array} \right. \quad (141)$$

On montre alors que (138) devient :

$$\begin{aligned} \frac{E^{n+1} - E^n}{\delta t} + \frac{W^{n+1} - W^n}{\delta t} + \gamma \frac{|\Sigma^{n+1}| - |\Sigma^n|}{\delta t} + \int_{\Omega^{n+1}} |\nabla u^{n+1} + (\nabla u^{n+1})^T|^2 \\ + \beta (u^{n+1} - u_b, u^{n+1})_{\partial \Omega^{n+1}} = \gamma \int_{\partial \Sigma^{n+1}} \cos(\theta_s) t_{\partial \Omega} \cdot u^{n+1} d\lambda_{\partial \Sigma} \\ - \int_{\Omega^n} \frac{\rho}{2\delta t} |u^{n+1} - u^n|^2 - \epsilon_g^n - \epsilon_{\gamma, imp}^n \end{aligned} \quad (142)$$

avec

$$\epsilon_{\gamma, imp}^n = -\frac{\gamma}{\delta t} \left(|\Sigma^{n+1}| - |\Sigma^n| - \delta t \int_{\Sigma^{n+1}} \text{tr}(\nabla_{\Sigma^{n+1}} w^n) \right). \quad (143)$$

Cette modification permet donc d'obtenir un schéma stable, puisque $\epsilon_g^n \geq 0$ (si le fluide le plus lourd est sous le plus léger) et $\epsilon_{\gamma, imp}^n \geq 0$ (pour un pas de temps suffisamment petit, en utilisant la SGCL). Bien sûr, la résolution du problème implicite (141) nécessite de faire plusieurs sous-itérations à chaque pas de temps, ce qui le rend beaucoup plus coûteux que le schéma explicite considéré jusqu'à maintenant.

Dans [TL21], nous complétons ces résultats théoriques par des simulations numériques montrant que :

- En utilisant un prédicteur pour u^{n+1} dans (141) ($u^{n+1} \simeq 2u^n - u^{n-1}$), on obtient un schéma explicite, et qui semble avoir les mêmes propriétés de stabilité (142) que le schéma implicite (141).
- Le schéma implicite (141) est parfois trop dissipatif pour des pas de temps assez grands, et on peut le rendre moins dissipatif (et toujours stable en norme d'énergie) en remplaçant le terme $\int_{\Omega^{n+1}} \rho g \cdot v$ par $\frac{1}{2} (\int_{\Omega^n} \rho g \cdot v + \int_{\Omega^{n+1}} \rho g \cdot v)$ (et de même pour le terme de tension de surface).

Ces deux résultats ne sont pas démontrés, mais reposent sur des constatations numériques.

Conclusion et travaux en cours

Une grande partie de mon activité de recherche en mathématiques appliquées a pour caractéristique de confronter des approches probabilistes (méthodes de Monte Carlo, équations différentielles stochastiques) et des approches déterministes (analyse des équations aux dérivées partielles), en vue de l'étude de problèmes appliqués à la physique des matériaux, à la chimie et à la biologie. Certaines problématiques sont issues de collaborations industrielles : collaborations avec Rio Tinto sur le thème de la modélisation des cuves d'électrolyse de l'aluminium, et collaboration avec Michelin sur le thème de la simulation mésoscopique des élastomères. De nombreuses questions intéressantes naissent de la confrontation de ces domaines scientifiques variés. Nous détaillons ci-dessous quelques travaux en cours sur les trois grandes thématiques examinées dans ce mémoire.

Sur le thème des modèles micro-macro pour les fluides viscoélastiques, nous cherchons à collaborer avec des praticiens du domaine pour vérifier sur des cas-test réalistes si les critères de stabilité de schéma basés sur l'entropie sont pertinents pour bâtir de meilleurs schémas numériques (cf. Section 1.4.2). Par ailleurs, les méthodes qui ont été proposées dans ce domaine pour résoudre des équations aux dérivées partielles en grande dimension (cf. Section 1.2.4) offrent de nombreuses perspectives : applications à d'autres domaines (en finance pour le calcul du prix des options sur panier, en dynamique moléculaire pour le calcul de la fonction *isocommitor*), preuves de convergence de ces méthodes, etc... Sur ce thème, nous travaillons également en collaboration avec Michelin sur la modélisation multi-échelle des élastomères chargés. Ce contrat a fait l'objet de plusieurs rapports de recherche confidentiels. Les développements les plus récents, en collaboration avec F. Legoll (LAMI), concerne la modélisation des cycles d'hystérésis (et notamment de sa composante non visqueuse) dans les expériences de chargement-déchargement. Nous avons notamment identifié les ingrédients à l'échelle mésoscopique nécessaires à l'obtention de ce comportement macroscopique. Ce travail est en cours de rédaction (cf. [TL42]). Nous signalons enfin un travail en cours [TL40] en collaboration avec S. Boyaval sur l'application des idées de type *reduced basis* pour réduire la variance de calculs de moyennes dépendant d'un paramètre par méthodes de Monte Carlo, avec pour application notamment le calcul du tenseur des contraintes dans les modèles micro-macro pour les fluides polymériques (le paramètre étant le gradient de vitesse perçu par les polymères).

Nous poursuivons également nos travaux sur la thématique de la MHD et des écoulements à surface libre au travers d'encadrements de stagiaires de l'Ecole des Ponts chez Rio Tinto. L'analyse de la stabilité des schémas numériques ALE en prenant en compte la gravité et la tension de surface ouvre la voie à de nouvelles questions (cf. Section 3.4.3). L'étude de la *Generalized Navier Boundary Condition* (cf. Section 3.4) permet d'envisager de nouvelles applications, où le rôle de la tension de surface et d'un modèle pertinent pour la ligne de contact sont prépondérants. Nous voulons notamment nous intéresser à la problématique de la modélisation du glissement de gouttes sur un substrat, toujours en collaboration avec Rio Tinto. Par ailleurs, dans le cadre de l'ANR METHODE et en collaboration avec A. Ern, nous nous intéressons à la comparaison de résultats obtenus par Navier-Stokes avec surface libre avec ceux provenant de modèles de type eau peu profonde. Il s'agit plus précisément d'étudier l'importance de la topographie pour des écoulements sur des sols en pente.

En ce qui concerne les problématiques en dynamique moléculaire, nous rédigeons un livre [TL43] pour regrouper l'ensemble de nos résultats récents sur les méthodes numériques pour le calcul d'énergie libre (cf. Section 2.2). Nous poursuivons actuellement notre recherche dans plusieurs directions :

- Utilisation de méthodes particulières pour les dynamiques adaptatives "en grandeur

réelle” : il s’agit d’utiliser les méthodes numériques que nous avons proposées pour simuler des systèmes biologiques complexes (par exemple des canaux ioniques dans les membranes cellulaires), dans un code de dynamique moléculaire utilisé par les professionnels du domaine : NAMD. Ce travail est fait en collaboration avec G. Stoltz et C. Chipot (CNRS, Nancy), dans le cadre de la thèse de K. Minoukadeh. De plus, en collaboration avec F. Legoll (LAMI) et P. Fleurat-Lessard (ENS Lyon), nous cherchons à utiliser ces méthodes pour obtenir des chemins réactionnels, dans le cadre de l’ANR SIRE.

- Méthodes adaptatives pour l’échantillonnage de lois *a posteriori* en statistique bayésienne : en collaboration avec N. Chopin (ENSAE) et G. Stoltz, nous essayons d’appliquer les méthodes adaptatives utilisées en dynamique moléculaire pour l’échantillonnage de mesures multi-modales utilisées en statistique bayésienne ([TL44]).
- Dynamique effective et *coarse-graining* : en collaboration avec F. Legoll (LAMI), nous travaillons sur la dérivation de dynamiques réduites sur des “quantités macroscopiques” à partir de dynamiques microscopiques (cf. [TL42]). Dans le langage de la section 2.2, il s’agit essentiellement de trouver une dynamique effective (markovienne) sur la coordonnée de réaction. La littérature sur le sujet est abondante, et nous avons choisi de travailler sur une dynamique particulière (*overdamped Langevin*) en utilisant des outils mathématiques originaux dans ce contexte (méthodes d’entropie). L’objectif de cette étude est double : (i) dériver de “bonnes” dynamiques effectives, (ii) estimer la différence entre la dynamique effective et la projection de la dynamique microscopique. Une question sous-jacente à l’item (i) d’un grand intérêt pratique est : sous quelles conditions peut-on dire que la dynamique effective est une dynamique de type (*overdamped*) Langevin, avec comme potentiel l’énergie libre ? Autrement dit, l’énergie libre (quantité définie à l’équilibre thermodynamique) porte-t-elle une information dynamique ?
- Calcul de force dans les méthodes de type QMC. Il s’agit d’élaborer des méthodes numériques efficaces pour calculer la dérivée d’une fonction donnée sous la forme d’une espérance d’une fonctionnelle dépendant d’un paramètre. Ce travail est en collaboration avec R. Assaraf (CNRS, Université Pierre et Marie Curie) et B. Jourdain, dans le cadre de la thèse de R. Roux.

Nous travaillons sur ces sujets en étroite collaboration avec un chimiste (P. Fleurat-Lessard, ENS Lyon), un physicien (R. Assaraf, CNRS, Université Pierre et Marie Curie) et un biologiste (C. Chipot, CNRS Nancy). De manière générale, nous nous intéressons à analyser les capacités des méthodes adaptatives qui ont été développées en dynamique moléculaire pour améliorer l’échantillonnage de mesures métastables, en les regardant comme des méthodes de réduction de variance par une fonction d’importance adaptative. Ceci offre de nombreuses perspectives : applications à d’autres domaines, plus grande flexibilité de la méthode.

Références

- [1] M.P. Allen and D.J. Tildesley. *Computer simulation of liquids*. Oxford Science Publications, 1987.
- [2] L. Ambrosio, N. Fusco, and D. Pallara. *Functions of bounded variation and free discontinuity problems*. Oxford science publications, 2000.
- [3] L. Ambrosio and H.M. Soner. Level set approach to mean curvature flow in arbitrary codimension. *J. Differential Geom.*, 43(4) :693–737, 1996.
- [4] A. Ammar, B. Mokdad, F. Chinesta, and R. Keunings. A new family of solvers for some classes of multidimensional partial differential equations encountered in kinetic theory modeling of complex fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 139 :153–176, 2006.
- [5] A. Ammar, B. Mokdad, F. Chinesta, and R. Keunings. A new family of solvers for some classes of multidimensional partial differential equations encountered in kinetic theory modeling of complex, part II : Transient simulation using space-time separated representations. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 144 :98–121, 2007.
- [6] C. Ané, S. Blachère, D. Chafaï, P. Fougères, I. Gentil, F. Malrieu, C. Roberto, and G. Scheffer. *Sur les inégalités de Sobolev logarithmiques*. Société Mathématique de France, 2000. In French.
- [7] A. Arnold, P. Markowich, G. Toscani, and A. Unterreiter. On convex Sobolev inequalities and the rate of convergence to equilibrium for Fokker-Planck type equations. *Comm. Part. Diff. Eq.*, 26 :43–100, 2001.
- [8] R. Assaraf, M. Caffarel, and A. Khelif. Diffusion Monte Carlo methods with a fixed number of walkers. *Phys. Rev. E*, 61 :4566, 2000.
- [9] V. Babin, C. Roland, and C. Sagui. Adaptively biased molecular dynamics for free energy calculations. *J. Chem. Phys.*, 128 :134101, 2008.
- [10] M. Bajaj, M. Pasquali, and J.R. Prakash. Coil-stretch transition and the breakdown of computations for viscoelastic fluid flow around a confined cylinder. *J. Rheol.*, 52 :197–223, 2008.
- [11] D. Bakry. On Sobolev and logarithmic Sobolev inequalities for Markov semigroups. In *New trends in stochastic analysis*, pages 43–75. World Scientific, 1997.
- [12] J.W. Barrett, C. Schwab, and E. Süli. Existence of global weak solutions for some polymeric flow models. *Math. Models and Methods in Applied Sciences*, 15(6) :939–983, 2005.
- [13] J.W. Barrett and E. Süli. Existence of global weak solutions to kinetic models for dilute polymers. *Multiscale Model. Simul.*, 6(2) :506–546, 2007.
- [14] A.R. Barron, A. Cohen, W. Dahmen, and R.A. DeVore. Approximation and learning by greedy algorithms. *Annals of Statistics*, 36(1) :64–94, 2008.
- [15] A.N. Beris and B.J. Edwards. *Thermodynamics of flowing systems with internal microstructure*. Oxford University Press, 1994.
- [16] R.B. Bird, R.C. Armstrong, and O. Hassager. *Dynamics of polymeric liquids*, volume 1. Wiley Interscience, 1987.
- [17] R.B. Bird, C.F. Curtiss, R.C. Armstrong, and O. Hassager. *Dynamics of polymeric liquids*, volume 2. Wiley Interscience, 1987.
- [18] R.B. Bird, P.J. Dotson, and N.L. Johnson. Polymer solution rheology based on a finitely extensible bead-spring chain model. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 7 :213–235, 1980. Errata : *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 8 :193 (1981).

- [19] V. Bojarevics and M.V. Romerio. Long wave instability of liquid metal-electrolyte interface in aluminium electrolysis cells : a generalization of Sele's criterion. *Eur. J. Mech. B/Fluids*, 13(1) :33–56, 1994.
- [20] A. Bonito, Ph. Clément, and M. Picasso. Mathematical analysis of a stochastic simplified Hookean dumbbells model arising from viscoelastic flow. *J. Evol. Equ.*, 6(3) :381–398, 2006.
- [21] J. Bonvin and M. Picasso. Variance reduction methods for CONNFFESSIT-like simulations. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 84 :191–215, 1999.
- [22] J.U. Brackbill and W.E. Pracht. An implicit, almost lagrangian algorithm for magnetohydrodynamics. *J. Comput. Phys.*, 13 :455–482, 1973.
- [23] H.-J. Bungartz and M. Griebel. Sparse grids. *Acta Numer.*, 13 :147–269, 2004.
- [24] E. Cancès, F. Legoll, and G. Stoltz. Theoretical and numerical comparison of some sampling methods for molecular dynamics. *Mathematical Modelling and Numerical Analysis*, 41(2) :351–389, 2007.
- [25] D.M. Ceperley. Fermion nodes. *J. Stat. Phys.*, 63 :1237–1267, 1991.
- [26] C. Chauvière and A. Lozinski. Simulation of dilute polymer solutions using a Fokker-Planck equation. *Computers and fluids*, 33(5-6) :687–696, 2004.
- [27] C. Chipot and A. Pohorille, editors. *Free Energy Calculations*, volume 86 of *Springer Series in Chemical Physics*. Springer, 2007.
- [28] P.G. Ciarlet and C. Le Bris, editors. *Computational Chemistry*, volume 10 of *Handbook of numerical analysis*. North Holland, 2003.
- [29] G. Ciccotti, R. Kapral, and E. Vanden-Eijnden. Blue moon sampling, vectorial reaction coordinates, and unbiased constrained dynamics. *ChemPhysChem*, 6(9) :1809–1814, 2005.
- [30] E. Darve and A. Porohille. Calculating free energy using average forces. *J. Chem. Phys.*, 115 :9169–9183, 2001.
- [31] P.A Davidson and R.I. Lindsay. Stability of interfacial waves in aluminium reduction cells. *J. Fluid Mech.*, 362 :273–295, 1998.
- [32] E.B. Davies. Spectral properties of metastable Markov semigroups. *J. Funct. Anal.*, 52 :315–329, 1983.
- [33] G. Davis, S. Mallat, and M. Avellaneda. Adaptive greedy approximations. *Constr. Approx.*, 13(1) :57–98, 1997.
- [34] P.G. de Gennes. Concept de reptation pour une chaîne polymérique. *J. Chem. Phys.*, 55 :572–579, 1971.
- [35] P. Del Moral. *Feynman-Kac Formulae : Genealogical and Interacting Particle Systems with Applications*. Springer-Verlag, 2004.
- [36] P. Delaunay, A. Lozinski, and R.G. Owens. Sparse tensor-product Fokker-Planck-based methods for nonlinear bead-spring chain models of dilute polymer solutions. *CRM Proceedings and Lecture Notes, Volume 41*, 2007.
- [37] M.C. Delfour and J.-P. Zolésio. *Shapes and Geometries : analysis, differential calculus, and optimization*. Advances in design and control. SIAM, 2001.
- [38] R.A. DeVore and V.N. Temlyakov. Some remarks on greedy algorithms. *Adv. Comput. Math.*, 5 :173–187, 1996.
- [39] M. Doi and S.F. Edwards. *The Theory of Polymer Dynamics*. International Series of Monographs on Physics. Oxford University Press, 1988.

- [40] W. E, T. Li, and P.W. Zhang. Well-posedness for the dumbbell model of polymeric fluids. *Commun. Math. Phys.*, 248 :409–427, 2004.
- [41] W. E and E. Vanden-Eijnden. Metastability, conformation dynamics, and transition pathways in complex systems. In *Multiscale modelling and simulation*, volume 39 of *Lect. Notes Comput. Sci. Eng.*, pages 35–68. Springer, Berlin, 2004.
- [42] M.S. Engelman, R.L. Sani, and P.M. Gresho. The implementation of normal and/or tangential velocity boundary conditions in finite element codes for incompressible fluid flow. *Int. J. Num. Meth. Fluids*, 2(3) :225–238, 1982.
- [43] L.C. Evans and R.F. Gariepy. *Measure theory and fine properties of functions*. Studies in Advanced Mathematics. CRC Press, 1992.
- [44] R. Fattal and R. Kupferman. Time-dependent simulation of viscoelastic flows at high Weissenberg number using the log-conformation representation. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 126 :23–37, 2005.
- [45] L. Formaggia and F. Nobile. A stability analysis for the arbitrary Lagrangian Eulerian formulation with finite elements. *East-West J. Numer. Math.*, 7(2) :105–131, 1999.
- [46] D. Frenkel and B. Smit. *Understanding molecular simulation : from algorithms to applications*. Academic Press, 2002.
- [47] N. Grunewald, F. Otto, C. Villani, and M.G. Westdickenberg. A two-scale approach to logarithmic Sobolev inequalities and the hydrodynamic limit. *Ann. Inst. H. Poincaré Probab. Statist.*, 2008. To appear.
- [48] H. Guillard and C. Farhat. On the significance of the geometric conservation law for flow computations on moving meshes. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.*, 190(11-12) :1467–1482, 2000.
- [49] P. Hébraud and F. Lequeux. Mode-coupling theory for the pasty rheology of soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :2934–2937, 1998.
- [50] J. Hénin and C. Chipot. Overcoming free energy barriers using unconstrained molecular dynamics simulations. *J. Chem. Phys.*, 121 :2904–2914, 2004.
- [51] E.J. Hinch. Brownian motion with stiff bonds and rigid constraints. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 271 :219–234, 1994.
- [52] C.W. Hirt, A.A. Amsden, and J.L. Cook. An arbitrary Lagrangian-Eulerian computing method for all flow speeds. *J. Comput. Phys.*, 14(3) :227–253, 1974.
- [53] C.W. Hirt and B.D. Nichols. Volume of fluids (VOF) method for the dynamics of free boundaries. *J. Comput. Phys.*, 39 :201–225, 1981.
- [54] M.A. Hulsen, R. Fattal, and R. Kupferman. Flow of viscoelastic fluids past a cylinder at high Weissenberg number : stabilized simulations using matrix logarithms. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 127(1) :27–39, 2005.
- [55] M.A. Hulsen, A.P.G. van Heel, and B.H.A.A. van den Brule. Simulation of viscoelastic flows using Brownian configuration fields. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 70 :79–101, 1997.
- [56] M. Iannuzzi, A. Laio, and M. Parrinello. Efficient exploration of reactive potential energy surfaces using Car-Parrinello molecular dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 90(23) :238302, 2003.
- [57] C. Jarzynski. Equilibrium free energy differences from nonequilibrium measurements : A master equation approach. *Phys. Rev. E*, 56(5) :5018–5035, 1997.
- [58] R. Keunings. A survey of computational rheology. In D.M. Binding et al., editor, *Proc. 13th Int. Congr. on Rheology*, pages 7–14. British Society of Rheology, 2000.

- [59] R. Keunings. Micro-macro methods for the multiscale simulation of viscoelastic flows using molecular models of kinetic theory. In D.M. Binding and K. Walters, editors, *Rheology Reviews 2004*. British Society of Rheology, 2004.
- [60] J.G. Kirkwood. Statistical mechanics of fluid mixtures. *J. Chem. Phys.*, 3 :300–313, 1935.
- [61] D.J. Knezevic and E. Süli. Spectral Galerkin approximation of Fokker-Planck equations with unbounded drift. Technical Report Numerical Analysis Group technical report 07/16, Oxford University, 2008.
- [62] R. Kupferman and Y. Shamaï. Optimal choices of correlation operators in brownian simulation methods. *SIAM MMS*, 7(1) :321–348, 2008.
- [63] M. Laso and H.C. Öttinger. Calculation of viscoelastic flow using molecular models : The CONNFFESSIT approach. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 47 :1–20, 1993.
- [64] B. Leimkuhler and S. Reich. *Simulating Hamiltonian dynamics*. Cambridge University Press, 2004.
- [65] A.I. Leonov. Analysis of simple constitutive equations for viscoelastic liquids. *J. non-newton. fluid mech.*, 42(3) :323–350, 1992.
- [66] M. Lesoinne and C. Farhat. Geometric conservation laws for flow problems with moving boundaries and deformable meshes and their impact on aeroelastic computations. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 134 :71–90, 1996.
- [67] T. Li, H. Zhang, and P.W. Zhang. Local existence for the dumbbell model of polymeric fluids. *Comm. Part. Diff. Eq.*, 29(5-6) :903–923, 2004.
- [68] T. Li and P.W. Zhang. Convergence analysis of BCF method for Hookean dumbbell model with finite difference scheme. *SIAM MMS*, 5(1) :205–234, 2006.
- [69] F.-H. Lin, C. Liu, and P.W. Zhang. On a micro-macro model for polymeric fluids near equilibrium. *Comm. Pure Appl. Math.*, 60(6) :838–866, 2007.
- [70] P.L. Lions and N. Masmoudi. Global solutions for some Oldroyd models of non-Newtonian flows. *Chin. Ann. Math., Ser. B*, 21(2) :131–146, 2000.
- [71] P.L. Lions and N. Masmoudi. Global existence of weak solutions to micro-macro models. *C. R. Math. Acad. Sci.*, 345(1) :15–20, 2007.
- [72] A. Lozinski. *Spectral methods for kinetic theory models of viscoelastic fluids*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2003. Available at <http://library.epfl.ch/theses/?nr=2860>.
- [73] A. Lozinski and C. Chauvière. A fast solver for Fokker-Planck equation applied to viscoelastic flows calculations. *J. Comp. Phys.*, 189(2) :607–625, 2003.
- [74] N. Masmoudi. Well posedness for the FENE dumbbell model of polymeric flows. *Comm. Pure Appl. Math.*, 61(12) :1685–1714, 2008.
- [75] B. Maury. Characteristics ALE methods for the unsteady 3D Navier-Stokes equations with a free surface. *Comp. Fluid. Dyn.*, 6 :175–188, 1996.
- [76] B. Nkonga and H. Guillard. Godunov type method on nonstructured meshes for three-dimensional moving boundary problems. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.*, 113(1-2) :183–204, 1994.
- [77] W. K. den Otter and W. J. Briels. The calculation of free-energy differences by constrained molecular-dynamics simulations. *J. Chem. Phys.*, 109(11) :4139–4146, 1998.
- [78] H.C. Öttinger. *Stochastic Processes in Polymeric Fluids*. Springer, 1995.

- [79] H.C. Öttinger. *Beyond Equilibrium Thermodynamics*. Wiley, 2005.
- [80] R.G. Owens. A new microstructure-based constitutive model for human blood. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 140 :57–70, 2006.
- [81] A. Peterlin. Hydrodynamics of macromolecules in a velocity field with longitudinal gradient. *J. Polym. Sci. B*, 4 :287–291, 1966.
- [82] T.Z. Qian, X.P. Wang, and P. Sheng. Molecular scale contact line hydrodynamics of immiscible flows. *Phys. Rev. E*, 68 :016306, 2003.
- [83] T.Z. Qian, X.P. Wang, and P. Sheng. Molecular hydrodynamics of the moving contact line in two-phase immiscible flows. *Commun. Comput. Phys.*, 1(1) :1–52, 2006.
- [84] J.M. Rallison and E.J. Hinch. Do we understand the physics in the constitutive equation? *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 29 :37–55, 1988.
- [85] M. Renardy. Local existence theorems for the first and second initial-boundary value problems for a weakly non-Newtonian fluid. *Arch. Rat. Mech. Anal.*, 83 :229–244, 1983.
- [86] M. Renardy. Local existence of solutions of the Dirichlet initial-boundary value problem for incompressible hypoelastic materials. *SIAM J. Math. Anal.*, 21(6) :1369–1385, 1990.
- [87] M. Rousset and G. Stoltz. Equilibrium sampling from nonequilibrium dynamics. *J. Stat. Phys.*, 123(6) :1251–1272, 2006.
- [88] T. Sele. Instabilities of the metal surface in electrolytic cells. *Light Metal*, pages 7–24, 1977.
- [89] Y.D. Shikhmurzaev. Moving contact line in liquid/liquid/solid systems. *J. Fluid. Mech.*, 334 :211–249, 1997.
- [90] A. Soulaïmani, M. Fortin, G. Dhatt, and Y. Ouellet. Finite element simulation of two- and three dimensional free surface flows. *Comp. Meth. Appl. Mech. Engng*, 86 :265–296, 1991.
- [91] M. Sprik and G. Ciccoti. Free energy from constrained molecular dynamics. *J. Chem. Phys.*, 109(18) :7737–7744, 1998.
- [92] J.K.C. Suen, Y.L. Joo, and R.C. Armstrong. Molecular orientation effects in viscoelasticity. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 34 :417–444, 2002.
- [93] M. Sussman, P. Smereka, and S. Osher. A level set approach for computing solutions to incompressible two-phase flow. *J. Comput. Phys.*, 114 :146–159, 1994.
- [94] D. Talay. Approximation of upper Lyapunov exponents of bilinear stochastic differential systems. *SIAM J. Numer. Anal.*, 28(4) :1141–1164, 1991.
- [95] D. Talay and L. Tubaro. Expansion of the global error for numerical schemes solving stochastic differential equations. *Stochastic Anal. Appl.*, 8(4) :483–509 (1991), 1990.
- [96] R. Temam. *Navier-Stokes Equations*. North-Holland, 1979. Revised edition.
- [97] V.N. Temlyakov. Greedy approximation. *Acta Numerica*, 17 :235–409, 2008.
- [98] B. Thomases and M. Shelley. Emergence of singular structures in Oldroyd-B fluids. *Phys. Fluids*, 19 :103103, 2007.
- [99] C.J. Umrigar, M.P. Nightingale, and K.J. Runge. A diffusion Monte Carlo algorithm with very small time-step errors. *J. Chem. Phys.*, 99 :2865, 1993.
- [100] C.J. Umrigar, K.G. Wilson, and J.W. Wilkins. Optimal trial wave functions for quantum Monte Carlo calculations. *Phys. Rev. Lett.*, 60 :1719–1722, 1988.
- [101] N.G. van Kampen. Statistical mechanics for trimers. *App. Sci. Res.*, 37 :67–75, 1981.

- [102] T. von Petersdorff and C. Schwab. Numerical solution of parabolic equations in high dimensions. *M2AN Math. Model. Numer. Anal.*, 38(1) :93–127, 2004.
- [103] F. Wang and D.P. Landau. Determining the density of states for classical statistical models : A random walk algorithm to produce a flat histogram. *Phys. Rev. E*, 64 :056101, 2001.
- [104] P. Wapperom and M.A. Hulsen. Thermodynamics of viscoelastic fluids : the temperature equation. *J. Rheol.*, 42(5) :999–1019, 1998.
- [105] H. Zhang and P.W. Zhang. Local existence for the FENE-dumbbell model of polymeric fluids. *Archive for Rational Mechanics and Analysis*, 2 :373–400, 2006.